TOME 15. N° 2. FÉVRIER 1954.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE
ET
LE RADIUM

MÉCANIQUE DU POINT

Par A. PROCA,
Institut Henri Poincaré, Paris.

Sommaire. — La mécanique classique actuelle ne tire pas avantage de toutes les ressources mises à sa disposition par le principe de la relativité restreinte. L'auteur propose donc une nouvelle forme de mécanique qui se réduit à la précédente dans un cas particulier et dont le pouvoir de description semble plus étendu.

L'hypothèse de base consiste à admettre que les équations fondamentales font intervenir non pas les x^k, mais de nouvelles variables ξ, de caractère spinoriel, à partir desquelles on peut calculer les grandeurs d'univers. Autrement dit, le mouvement d'un point matériel est déterminé non pas dans l'espace-temps, mais dans certains espaces spinoriels sous-jacents, liés à l'Univers par l'intermédiaire de l'espace des vitesses.

On écrit les équations du mouvement et leurs intégrales premières simples. Le point matériel ainsi défini possède un spin. Son mouvement ne suit pas en général la loi d'inertie; il est constitué par la superposition d'un déplacement à vitesse constante et d'un « tremblement de Schrödinger ». Ce dernier peut être absent et dans ce cas particulier le point se meut à vitesse constante comme en Mécanique classique. On étudie ensuite le mouvement d'une particule chargée dans un champ électromagnétique et l'on retrouve l'expression de la force de Lorentz ainsi que l'effet d'un moment électromagnétique sous la même forme qu'en électrodynamique classique.

1. Les nouveaux résultats expérimentaux concernant les diverses particules fondamentales, ainsi que les graves difficultés que rencontre la théorie dans sa forme actuelle, rendent indispensable une révision complète de celle-ci.

Les nouvelles exigences sont très variées et il semble difficile à l'heure actuelle d'établir un formalisme cohérent qui puisse résoudre à la fois, par exemple, le problème de la self-énergie et celui de la quantification de la masse. Pour un certain temps encore, nous serons obligés de chercher des solutions partielles, résolvant tel ou tel problème particulier, avant d'aboutir à une synthèse générale, complètement satisfaisante. Or, il est clair que nous arriverons à cette synthèse d'autant plus facilement que nos instruments d'investigation seront plus parfaits. Il ne semble donc pas dénué d'intérêt d'examiner avant toute chose ces instruments, — en d'autres termes la Mécanique du point matériel, — pour voir s'ils ne peuvent être améliorés, et cela d'une façon tout à fait générale, sans référence à une difficulté ou un problème particuliers.

2. Par « Mécanique » nous devons naturellement entendre la mécanique quantique. Celle-ci procède cependant de la mécanique classique et il est évident que les imperfections de cette dernière se répercuteront sur la mécanique quantique elle-même. Le programme de travail correct consisterait donc à soumettre la mécanique classique à un examen critique, comme indiqué plus haut, à essayer de l'améliorer si nécessaire et à passer ensuite à la mécanique quantique par le processus de quantification usuel. C'est dans cette voie que nous tenterons de nous engager.

3. Pour analyser la situation actuelle, remarquons que, lorsqu'on néglige les effets de gravitation et qu'on tient compte de l'inertie au moyen d'un coefficient de masse, la mécanique classique des particules fondamentales est dominée entièrement par le principe de la relativité restreinte. En d'autres termes, elle doit satisfaire aux exigences de cette relativité.

Or, certaines de ces exigences sont de telle nature que l'on a recherché des raisons pour ne pas s'y plier, ce qui équivaut au fond à un rejet partiel du principe de relativité. Nous sommes ainsi placés devant l'alternative suivante : ou bien admettre toutes les

conséquences de ce principe ou bien le rejeter. Cette dernière attitude étant insoutenable dans l'état actuel de la science, nous sommes tenus jusqu'à nouvel ordre à accepter *toutes* les conséquences qui découlent de l'application du principe de relativité.

L'exemple le plus frappant de cet état de choses est l'existence, requise par la relativité, de caractéristiques qui se traduisent par des « énergies » ou « masses » négatives. En théorie classique la masse au repos d'un corpuscule de moment p_μ ($\mu = 1, 2, 3, 4$) peut être soit $m_0 = +\sqrt{-\sum_1^4 p_\rho^2}$ soit $-m_0$. Il est exact que quelques fois le double signe n'est pas gênant et que nous pouvons passer sous silence les cas où $m_0 < 0$. Il n'en est pas moins vrai que cette règle n'est pas générale. Bien au contraire, le double signe de m_0 est lié essentiellement au caractère quadratique de l'invariant de la relativité. Tant que nous admettrons la validité de la relativité restreinte, nous devrons donc compter avec la possibilité d'un signe négatif, quitte à l'interpréter physiquement, si possible, d'une manière satisfaisante.

4. Une autre remarque relative aux améliorations souhaitables de la mécanique concerne la possibilité de décrire classiquement une particule possédant un spin différent de zéro.

On a souvent écrit que le spin est un effet quantique; le seul argument à l'appui de cette thèse est le fait qu'on n'a pas encore réussi à décrire une particule à spin en mécanique classique. Diverses tentatives ont été faites en ce sens ([1]), mais qui n'ont pas toujours abouti à des résultats complets ou indiscutables.

En mécanique quantique le spin apparaît dès qu'on tient compte de la relativité. Il semble assez probable qu'il en soit également ainsi en mécanique classique et que l'origine du spin doive être cherchée plutôt dans les rotations fondamentales de la relativité que dans les discontinuités de la quantification. Quoi qu'il en soit, la description du spin nécessite l'introduction de nouvelles variables dont le choix n'est pas aisé; heureusement, une réponse raisonnable à ce problème peut être fournie par l'observation du paragraphe suivant.

([1]) *Voir* en particulier : M. Mathisson, *Acta Phys. Polonica*, 1937, **6**, 163 et T. W. Weyssenhoff, *ibid.*, 1947, **9**, 1. *Voir* également L. de Broglie, *La théorie des particules de spin* $\frac{1}{2}$, Gauthier-Villars, Paris, 1952 où se trouve un exposé de la théorie de Weyssenhoff. *Voir* la critique de cette dernière par C. Møller, *Comm. Dublin Institute*, A, n° 5 et *Ann. Inst. H. Poincaré*, 1949, **11**, 251. Enfin citons M. H. L. Pryce, *Proc. Roy. Soc.*, 1948, A **195**, 62; Hönl, *Naturwiss*, 1938, **26**, 408; Hönl et Papapetrou, *Z. Physik*, 1939, **112**, 512 et 1939, **114**, 478; Papapetrou, *Proc. Roy. Soc.*, 1951, **209**, 248 et 260.

5. La condition de covariance par rapport aux transformations de Lorentz a permis de caractériser les grandeurs susceptibles de décrire les phénomènes physiques (scalaires, vecteurs, etc.) et même d'établir en quelque sorte une hiérarchie, basée sur leur complexité croissante. Parmi ces grandeurs figurent non seulement les tenseurs, mais aussi les spineurs. On peut même dire que, dans la hiérarchie ci-dessus, les spineurs de rang 1 sont « plus simples » que le tenseur le plus élémentaire, à savoir le vecteur; en effet on peut former un vecteur à partir de spineurs par des opérations rationnelles, alors que l'inverse n'est pas vrai.

Or, pour des raisons évidentes aucune théorie classique ne fait appel aux spineurs ([2]). Il est vrai qu'aucune grandeur physique *mesurable* ne peut être représentée par un spineur en raison du caractère bivalent de ce dernier, mais cette éventualité n'est pas la seule possible. Tout en supposant que les grandeurs physiques mesurables dans l'espace-temps sont exclusivement des tenseurs, il est bien difficile de ne pas admettre que l'introduction des spineurs dans la théorie présente des avantages marqués, en raison des possibilités qu'elle offre d'utiliser toutes les ressources du groupe de Lorentz. Les paragraphes suivants sont destinés à montrer le parti qu'on peut tirer de cette supposition.

6. **Hypothèse de base.** — Le nombre minimum de spineurs compatible avec l'invariance par rapport au groupe de Lorentz, que nous postulons, est deux. Désignons par ξ l'ensemble de ces deux spineurs, groupés comme dans le ψ de la théorie de Dirac et posons comme d'habitude $\xi^+ = i\xi^*\gamma^4 =$ adjoint de ξ.

Nos hypothèses fondamentales s'énoncent alors de la façon suivante :

I. *Tout phénomène physique et en particulier le mouvement d'un point est décrit au moyen des spineurs* ξ *et* ξ^+.

Les résultats expérimentaux se référant à des mesures dans l'espace-temps, il est indispensable de compléter I, en indiquant de quelle façon cet espace-temps est relié aux espaces spinoriels ξ et ξ^+. A cet effet nous allons admettre que :

II. *Si* τ *est un paramètre invariant en fonction duquel on définit le mouvement et* γ^ρ *les matrices* 4×4 *tels que* $\gamma^r\gamma^s + \gamma^s\gamma^r = 2\delta^{rs}$, *on posera*

$$\boxed{\frac{dx^\rho}{d\tau} = \xi^+\gamma^\rho\xi} \qquad (\rho = 1, 2, 3, 4).$$

([2]) *Voir* toutefois la *théorie du gyroscope*, de F. Klein, qui semble être le premier à avoir utilisé des grandeurs spinorielles dans un problème de Mécanique classique ainsi que l'a rappelé récemment M. Bopp. Chez cet auteur ainsi que chez Darboux (*Leçons sur la théorie générale des surfaces*), que le premier cite d'ailleurs, les grandeurs spinorielles s'introduisent comme des variables auxiliaires dans l'étude des rotations; les équations fondamentales n'en sont pas modifiées.

Ce choix est arbitraire, mais naturel. Le second membre est le seul vecteur réel du genre temps formé bilinéairement avec ξ et ξ^+ qu'on puisse identifier à un vecteur d'univers caractérisant le mouvement.

D'après I donc, les équations de base de la théorie relient les ξ, ξ^+ et leurs dérivées : les phénomènes et en particulier le mouvement d'un point, sont déterminés non plus dans l'espace-temps x^ρ mais dans les espaces spinoriels sous-jacents ξ, ξ^+ liés à la vitesse. Nous pouvons considérer ces espaces comme les éléments fondamentaux dans la description des phénomènes. Corrélativement, on peut dire que les transformations fondamentales ne sont pas celles qui concernent les vecteurs x^ρ mais celles qui définissent les spineurs fondamentaux, dont résultent les transformations de Lorentz.

Le lien entre les espaces spinoriels et l'espace-temps ordinaire x^ρ est donné par II. Le passage de l'un à l'autre peut se définir en faisant correspondre une courbe de ξ, ξ^+, donnée sous forme paramétrique $\xi_r = f_r(\tau)$ à une courbe de l'univers définie paramétriquement par les équations différentielles $dx^\rho = \xi^+(\tau)\,\gamma^\rho\xi(\tau)\,d\tau$. La donnée des ξ et ξ^+ ne permet pas de calculer les coordonnées elles-mêmes mais seulement leurs dérivées. Les coordonnées restent indépendantes de ξ.

7. Notations. — ξ est une matrice à une colonne, d'éléments complexes ξ_1, ξ_2, ξ_3, ξ_4 ayant la même variance que le ψ de la théorie de l'électron de Dirac. En fonction de la matrice transposée et conjuguée, $\tilde{\xi}^*$, la matrice adjointe ξ^+ s'écrit

$$\xi^+ = i\tilde{\xi}^*\gamma^4. \tag{1}$$

$\gamma^\rho(\rho = 1, 2, 3, 4)$ sont les matrices 4×4 de von Neumann (tel que l'invariant quadratique soit $\xi^+\xi$) et $\gamma^5 = \gamma^1\gamma^2\gamma^3\gamma^4$. Nous adopterons les notations suivantes (qui sont celles de Pauli) pour les 16 covariants quadratiques formés à partir des produits de γ^ρ :

$$\left.\begin{array}{ll}
\text{Invariant} \ldots\ldots & \Omega_1 = -i\xi^+\xi, \\
\text{Vecteur d'univers} \ldots\ldots & u^\rho = \xi^+\gamma^\rho\xi, \\
\text{Tenseur antisymétrique.} & m_{\rho\sigma} = i\xi^+\frac{i}{2}(\gamma^\rho\gamma^\sigma - \gamma^\sigma\gamma^\rho)\xi, \\
\text{Pseudo-vecteur} \ldots\ldots & w^\rho = i\xi^+ i\gamma^5\gamma^\rho\xi, \\
\text{Pseudo-invariant} \ldots\ldots & \Omega_2 = \xi^+\gamma^5\xi.
\end{array}\right\} \tag{2}$$

Ces 16 termes ne sont pas indépendants, mais liés par neuf relations quadratiques bien connues ([3]). On a, par exemple :

$$\left.\begin{array}{l}
\Sigma(u^\rho)^2 = -\Sigma(w^\rho)^2 = -(\Omega_1^2 + \Omega_2^2), \\
\frac{1}{2}\Sigma(m_{\rho\sigma})^2 = \Omega_1^2 - \Omega_2^2, \\
u^\rho m_{\rho\sigma} + \Omega_2 w_\sigma = 0, \qquad \ldots
\end{array}\right\} \tag{3}$$

([3]) Citons seulement les travaux de O. Costa de Beauregard, *Thèse*, Paris, 1943; Kofink, *Annalen der Physik*, 1940, **38**, 421; G. Petiau, *J. Math. pures et appl.*, 1946, **25**, 335.

Dans l'espace-temps nous utilisons les coordonnées

$$x^k \quad \text{et} \quad x^4 = ict = ix^0,$$

c étant la vitesse de la lumière.

Nous appelons τ le paramètre réel par rapport auquel on considère la variation des diverses grandeurs. On a par hypothèse

$$\frac{dx^\rho}{d\tau} = \xi^+\gamma^\sigma\xi. \tag{II}$$

Appelons ds l'élément de « temps propre » de la particule dans l'espace-temps ordinaire, défini par

$$-c^2\,ds^2 = \sum_1^4 (dx^\rho)^2. \tag{4}$$

On aura alors en vertu de (II) et de (3) :

$$-c^2\frac{ds^2}{d\tau^2} = \Sigma(u^\rho)^2 = -(\Omega_1^2 + \Omega_2^2),$$

soit

$$d\tau = \frac{\pm c}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}}\,ds. \tag{5}$$

On en déduit l'expression de la *vitesse d'univers* de la particule

$$v^\rho = \frac{dx^\rho}{ds} = \frac{\pm c(\xi^+\gamma^\rho\xi)}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} \qquad \text{et} \qquad \Sigma(v_\rho)^2 + c^2 = 0. \tag{6}$$

8. **Lagrangien en l'absence de champ.** — Considérons maintenant le mouvement libre d'un point donné.

Le lagrangien correspondant dépendra essentiellement des ξ. Pour des raisons de variance relativiste, sa forme la plus simple sera celle qui nous est déjà familière :

$$L = \frac{1}{2}\left(\frac{d\xi^+}{d\tau}\xi - \xi^+\frac{d\xi}{d\tau}\right). \tag{7}$$

Si nous considérions l'analogie avec d'autres cas connus de la mécanique ondulatoire, nous serions tentés d'ajouter à ce premier terme un second, de la forme $ik^2\xi^+\xi$. Nous verrons cependant plus loin (§ 19) que ce terme est naturellement englobé dans les termes d'interaction avec un champ extérieur. Il n'y a donc pas lieu de l'introduire dans la description du comportement de la particule en l'absence de toute interaction.

Par contre, d'autres termes s'introduiront dans le lagrangien en raison des conditions dans lesquelles doit avoir lieu sa variation. En effet, d'après notre hypothèse fondamentale II, le covariant quadratique $\xi^+\gamma^\rho\xi$ doit toujours être égal à $\frac{dx^\rho}{d\tau} = \dot{x}^\rho$. Nous sommes en présence d'une variation avec conditions de liaison. Utilisons le procédé des multiplicateurs et considérons quatre fonctions inconnues λ_ρ de τ formant les composantes d'un vecteur.

Le lagrangien en l'absence de champ sera alors

$$L = \frac{1}{2}\left(\frac{d\xi^+}{d\tau}\xi - \xi^+\frac{d\xi}{d\tau}\right) + \lambda_\rho(\dot{x}^\rho - \xi^+\gamma^\rho\xi) \qquad (8)$$

et la variation portera sur ξ^+, ξ et x.

D'ailleurs, quelles que soient les raisons plus ou moins valables qui nous ont conduit à la forme (8), ce lagrangien constitue une nouvelle hypothèse à ajouter à celles du paragraphe 6.

9. Équations du point matériel libre. Quantité de mouvement. — Les équations fondamentales déduites de (8) sont

$$\frac{d\xi}{d\tau} = -\lambda_\rho\gamma^\rho\xi, \qquad \frac{d\xi^+}{d\tau} = +\lambda_\rho\xi^+\gamma^\rho, \qquad (9)$$

$$\frac{dx^\rho}{d\tau} = \xi^+\gamma^\rho\xi, \qquad \frac{d\lambda_\rho}{d\tau} = 0. \qquad (10)$$

Les dernières (10), ne sont autres que

$$\frac{d}{d\tau}\left(\frac{\partial L}{\partial \dot{x}^\rho}\right) = \frac{\partial L}{\partial x^\rho},$$

qui introduisent $\frac{\partial L}{\partial \dot{x}^\rho}$ le moment conjugué de x, autrement dit la « *quantité de mouvement* ». Dans la nouvelle théorie *la quantité de mouvement a donc comme composantes les multiplicateurs de Lagrange* utilisés lors de la variation.

En l'absence de champ, d'après (10), cette *quantité de mouvement est un vecteur constant* [4] qui n'est pas nécessairement proportionnel à la vitesse d'univers comme en théorie classique.

Il en est ainsi chaque fois que la particule possède un spin et cette différence entre vitesse et quantité de mouvement peut devenir très intéressante du point de vue expérimental. Le comportement d'un tel corpuscule pourrait être différent de celui que nous connaissons dans des conditions convenablement choisies.

En admettant que le vecteur constant λ_ρ soit également du genre temps, $\lambda_\rho\lambda^\rho < 0$, nous pouvons définir l'invariant

$$\left.\begin{array}{l} \lambda = m_0 c = \sqrt{-\lambda_\rho\lambda^\rho}, \\ \lambda^2 + \lambda_\rho\lambda^\rho = 0; \end{array}\right\} \qquad (11)$$

m_0 représente la *masse au repos* de la particule qui apparaît ici comme une constante d'intégration.

10. Grandeurs d'espace-temps pour le mouvement libre. Vitesse. — A étant une matrice 4×4 quelconque, on déduit des équations (9) la relation générale suivante où $[A, B] = AB - BA$:

$$\frac{d}{d\tau}(\xi^+ A\xi) = \lambda_\rho\xi^+[\gamma^\rho, A]\xi \qquad (12)$$

qui permet une série de conclusions intéressantes :

En posant par exemple $A = 1$, on a une intégrale première

$$\frac{d\Omega_1}{d\tau} = 0. \qquad (13)$$

Avec $A = \gamma^5$ et $\gamma^5\gamma^\rho$, on trouve

$$\frac{d\Omega_2}{d\tau} = 2\lambda_\rho w^\rho \qquad (14)$$

et

$$\frac{dw^\rho}{d\tau} = 2\lambda^\rho\Omega_2, \qquad (15)$$

lesquelles entraînent

$$\frac{d^2\Omega_2}{d\tau^2} + 4\lambda^2\Omega_2 = 0. \qquad (16)$$

On a également une autre intégrale première

$$(\lambda_\rho\lambda_\sigma + \lambda^2\delta_{\rho\sigma})w^\rho = \text{const.} \qquad (17)$$

et en conséquence aussi

$$\frac{d^2 w_\sigma}{d\tau^2} + 4\lambda^2 w_\sigma = \text{const.} \qquad (18)$$

En posant $A = \gamma^\sigma$, on obtient la dérivée de la vitesse, donc la *loi du mouvement proprement dite*. On a

$$\boxed{\frac{du^\sigma}{d\tau} = -2\lambda_\rho m^{\rho\sigma}.} \qquad (19)$$

On en déduit une autre intégrale première

$$\lambda u^\rho = \text{const.} \qquad (20)$$

En tenant compte de (23) que nous établirons plus loin, nous pouvons finalement écrire

$$\boxed{\frac{d^2u^\sigma}{d\tau^2} + 4\lambda^2 u^\sigma = \text{const.} = -4\lambda^\sigma(\lambda_\rho u^\rho),} \qquad (21)$$

d'où l'on déduit que l'expression générale de la vitesse sera

$$u^\sigma = \frac{dx^\sigma}{d\tau} = A^\sigma e^{2i\lambda\tau} + B^\sigma e^{-2i\lambda\tau} + C^\sigma, \qquad (22)$$

avec

$$C^\sigma = -\frac{\lambda^\sigma}{\lambda^2}(\lambda_\rho u^\rho) = \text{const.}$$

On lit sur cette formule le comportement d'un point matériel en l'absence de champ. On y voit que dans le cas particulier où les conditions initiales sont telles que $A^\sigma = B^\sigma = 0$ *le point se déplace à vitesse constante comme en mécanique classique.* En général cependant, la vitesse oscille avec la fréquence $2\lambda = 2m_0c$ d'une manière assez compliquée, surtout pour la vitesse d'univers, laquelle contient également un autre terme oscillant Ω_2. Le

[4] Noter qu'il s'agit ici de constance par rapport au paramètre τ. Dans la plupart des cas cela équivaut à une « constance d'univers » $\frac{d\lambda_\rho}{ds} = 0$, à cause de la proportionnalité (5) entre $d\tau$ et le temps propre ds.

détail de ces conditions et l'expression des coefficients sont donnés au paragraphe 12.

11. Spin. — En posant

$$A = \frac{1}{2}(\gamma^\mu \gamma^\nu - \gamma^\nu \gamma^\mu),$$

on trouve

$$\lambda_\mu u_\nu - \lambda_\nu u_\mu + \frac{1}{2}\frac{dm_{\mu\nu}}{d\tau} = 0 \qquad (23)$$

ou

$$\lambda_\mu dx_\nu - \lambda_\nu dx_\mu + \frac{1}{2} dm_{\mu\nu} = 0 \qquad (24)$$

ou encore

$$x_\mu \lambda_\nu - x_\nu \lambda_\mu - \frac{1}{2} m_{\mu\nu} = \text{const.} \qquad (25)$$

Nous pouvons donc affirmer que la particule libre possède un *spin*, donné par $\frac{1}{2} m_{\mu\nu}$, *ou plus généralement par*

$$\text{Spin} = \frac{1}{2} m_{\mu\nu} + \text{const.}, \qquad (26)$$

l'équation de définition (24) ne le fixant en réalité qu'à une constante arbitraire près.

Compte tenu de (23), on trouve l'intégrale première

$$\lambda_\mu m_{\nu\rho} + \lambda_\nu m_{\rho\mu} + \lambda_\rho m_{\mu\nu} = \text{const.} \qquad (27)$$

En dérivant (23), on trouve

$$\begin{aligned} \frac{d^2 m_{\mu\nu}}{d\tau^2} &= 4\lambda^\rho(\lambda_\mu m_{\rho\nu} - \lambda_\nu m_{\rho\mu}) \\ &= -4\lambda^\rho(\text{const.} - \lambda_\rho m_{\mu\nu}) \\ &= \text{const.} - 4\lambda^2 m_{\mu\nu}, \end{aligned}$$

donc

$$\frac{d^2 m_{\mu\nu}}{d\tau^2} + 4\lambda^2 m_{\mu\nu} = \text{const.} = -4\lambda^\rho(\Sigma \lambda_\mu m_{\nu\rho}). \qquad (28)$$

La définition du spin dépend du choix de la constante arbitraire. On peut la prendre nulle, auquel cas le spin est égal à $\frac{1}{2} m_{\mu\nu}$. Avec cette hypothèse une particule classique (qui sera étudiée plus loin au paragraphe 14) aura un spin dont toutes les composantes seront *constantes* et non pas nécessairement nulles dans la mesure où l'on ne confond pas ces constantes avec celles du second membre. Remarquons que ces deux possibilités sont équivalentes : d'après (23) si $m_{\mu\nu} = \text{const.}$ on a λ_μ proportionnel à la vitesse et la particule est bien un point matériel classique.

Si l'on tient absolument à définir un « spin » dont les composantes soient nulles pour le cas particulier d'un corpuscule classique, il faudra choisir la constante dans (26) de façon que la solution de (28) soit purement oscillante. Dans ce cas le « spin » peut s'écrire sous une forme simple, à savoir :

$$\begin{aligned} S_{\mu\nu} &= \frac{1}{2} m_{\mu\nu} + \text{const.} \\ &= \frac{\lambda_\rho}{2\lambda^2}(\lambda_\mu m_{\nu\rho} - \lambda_\nu m_{\mu\rho}) \end{aligned}$$

ou encore

$$\begin{aligned} S_{\mu\nu} &= \frac{1}{4\lambda^2}\frac{d}{d\tau}(\lambda_\mu u_\nu - \lambda_\nu u_\mu) \\ &= \frac{1}{4\lambda^2}\frac{d^2}{d\tau^2}(\lambda_\mu x_\nu - \lambda_\nu x_\mu). \end{aligned}$$

On vérifie aisément à l'aide de (21) que (23) est satisfaite par cette valeur de $S_{\mu\nu}$; d'autre part dans le cas classique $\lambda_\mu u_\nu - \lambda_\nu u_\mu = 0$, donc immédiatement $S_{\mu\nu} = 0$ [5].

12. Solution générale. « Potentiels ». — Des équations (9) et (10) on déduit

$$\frac{d^2\xi}{d\tau^2} + \lambda^2 \xi = 0, \qquad \frac{d^2\xi^+}{d\tau^2} + \lambda^2 \xi^+ = 0, \qquad \frac{d\lambda_\rho}{dt} = 0.$$

La solution générale s'écrit donc

$$\xi = a\, e^{i\lambda\tau} + b\, e^{-i\lambda\tau}, \qquad \xi^+ = b^+ e^{i\lambda\tau} + a^+ e^{-i\lambda\tau}, \qquad (29)$$

où $\lambda_\rho \lambda^\rho + \lambda^2 = 0$ et où λ_ρ, a, b sont des constantes satisfaisant aux équations

$$\left.\begin{aligned} (i\lambda + \lambda_\rho \gamma^\rho) a &= 0, & (-i\lambda + \lambda_\rho\gamma^\rho) b &= 0, \\ a^+(i\lambda + \lambda_\rho\gamma^\rho) &= 0, & b^+(-i\lambda + \lambda_\rho\gamma^\rho) &= 0. \end{aligned}\right\} \qquad (30)$$

On peut écrire la solution de ces équations (30) sous une forme commode, en remarquant que deux des composantes de a et deux de b, donc quatre en tout, sont arbitraires dans la solution. Considérons alors quatre constantes complexes arbitraires φ_1, φ_2, φ_3, φ_4 groupées en une colonne φ et que nous appellerons « potentiel » [6]. La solution des équations (30) s'écrit alors simplement :

$$\left.\begin{aligned} a &= (-i\lambda + \lambda_\rho\gamma^\rho)\varphi, & b &= (i\lambda + \lambda_\rho\gamma^\rho)\varphi, \\ a^+ &= \varphi^+(-i\lambda + \lambda_\rho\gamma^\rho), & b^+ &= \varphi^+(i\lambda + \lambda_\rho\gamma^\rho). \end{aligned}\right\} \qquad (31)$$

La forme générale des ξ en fonction de τ est donnée par (29) avec (31) ou encore par

$$\left.\begin{aligned} \xi &= 2(\lambda \sin\lambda\tau + \lambda_\rho\gamma^\rho \cos\lambda\tau)\varphi, \\ \xi^+ &= \varphi^+ . 2(-\lambda\sin\lambda\tau + \lambda_\rho\gamma^\rho\cos\lambda\tau). \end{aligned}\right\} \qquad (32)$$

On voit apparaître dans la solution générale les deux signes de λ, comme l'exige la relativité.

Le choix des constantes arbitraires a et b, ou λ_ρ, correspond aux diverses « conditions initiales » envisagées. Notons que ces « conditions initiales » sont plus nombreuses qu'en théorie classique et concernent également certaines caractéristiques de la particule elle-même et non pas seulement des éléments du mouvement. En les choisissant convenablement on obtiendra des cas particuliers inté-

(5) Ce choix peut être guidé par des considérations d'interaction ou de quantification, *voir* par exemple le paragraphe 17. De même, c'est l'expression $\frac{1}{2} m_{\mu\nu}$ (constante nulle) qui possède les valeurs propres correctes, lorsqu'on quantifie au moyen des relations de commutation habituelles.

(6) Ce procédé a été appliqué par M. B. Kwal à la théorie de l'électron de Dirac.

ressants, tel par exemple celui où ξ ne contient que la masse d'un seul signe, examiné au paragraphe suivant.

13. **Cas harmonique. Particule classique.** — Ce cas, que nous appellerons le «cas harmonique», est réalisé lorsque par exemple, $a = 0$ [valeur qui satisfait bien aux conditions (30)]. On a alors simplement

$$\xi = b\, e^{-i\lambda\tau}, \qquad \xi^+ = b^+ e^{i\lambda\tau}. \tag{33}$$

Examinons comment se présente alors le mouvement dans l'espace-temps.

Remarquons d'abord que toutes les grandeurs réelles de la forme $\xi^+ A \xi$ dans cet espace sont des constantes.

$\Omega_1 = -\, i b^+ b$ est une constante dans tous les cas, mais le second groupe d'équations (31) donne aussi

$$\Omega_2 = b^+ \gamma^5 b = 0. \tag{34}$$

Il en résulte, d'après (6), que la *vitesse d'univers de la particule est constante*

$$v^\sigma = \frac{c(b^+\gamma^\sigma b)}{\Omega_1} = \frac{ic(b^+\gamma^\rho b)}{b^+ b} \tag{35}$$

et donc que *la particule est assimilable à un point matériel classique.*

En multipliant les deux équations (30) par γ^σ, b et b^+ et en ajoutant, on obtient

$$-\, i\lambda\, b^+\gamma^\sigma b + \lambda^\sigma b^+ b = 0,$$

d'où en comparant avec (35) et (11)

$$\boxed{\lambda^\sigma = m_0 v^\sigma.} \tag{36}$$

Dans ce cas donc, la quantité de mouvement est proportionnelle à la vitesse, ce qui justifie encore une fois l'assimilation de m_0 à la masse au repos et de λ_σ à la quantité de mouvement.

Les composantes de $m_{\mu\nu}$ sont constantes celles de $S_{\mu\nu}$, nulles en vertu de (36).

Le cas harmonique décrit donc bien une particule classique. Inversement, si le spin est constant ou nul et que simultanément on ait $\Omega_2 = 0$, on aura affaire à une particule classique. En effet, on a alors $m_{\mu\nu} = \text{const.}$ donc, d'après (23), λ_μ proportionnel à u_μ. Comme en général [*voir* (3)]

$$u^\rho m_{\rho\nu} = -\, \Omega_2 w_\nu = 0,$$

on en déduit $\lambda^\rho m_{\rho\nu} = 0$, donc d'après (19), $\dfrac{du_\nu}{d\tau} = 0$; la particule se meut donc à vitesse constante.

Le cas de la particule classique, c'est-à-dire celui pour lequel le mouvement a lieu conformément au *principe d'inertie* n'est donc qu'un cas particulier du mouvement libre. Dans le cas général, ce principe n'est plus valable sous sa forme classique, mais il est aisé de voir par quoi il est remplacé.

Remarquons enfin que le spin apparaîtra lorsqu'on passe du cas harmonique au cas général, c'est-à-dire *lorsqu'on introduira dans l'expression de ξ la masse $-\, m_0$ en même temps que $+\, m_0$.* C'est là le mécanisme par lequel la relativité introduit le spin, et ce mécanisme n'a rien à voir avec l'analogie d'un corps tournant : l'essentiel n'est pas la rotation d'une masse positive, mais plutôt l'oscillation entre $+\, m_0$ et $-\, m_0$, véritable contrepartie classique du « tremblement de Schrödinger ». C'est là aussi la raison pour laquelle l'apparition du spin n'entraîne pas une augmentation de l'énergie totale par apport d'une énergie de rotation, ce qui se produirait inévitablement dans le cas d'un corps en rotation.

Le mécanisme ci-dessus est exactement celui par lequel le spin s'introduit en mécanique ondulatoire de l'électron où il a eu le succès que l'on sait (7).

14. **Particules classiques au repos.** — La manière dont les spineurs interviennent dans la théorie apparaît plus clairement lorsqu'on considère le cas d'une particule classique au repos. Dans ce cas puisque $\lambda_\rho = m_0 v_\rho$, la condition $v_k = 0$ se traduit par $\lambda_k = 0$ $(k = 1, 2, 3)$ et entraîne, soit $i\lambda = \lambda_4$, soit $i\lambda = -\lambda_4$. Pour chacun de ces deux cas, les grandeurs d'univers de la particule ne dépendent plus (au repos) que d'un seul spineur (φ_1, φ_2) ou (φ_3, φ_4). Par exemple, pour $i\lambda = \lambda_4$, on a

$$\left.\begin{aligned} i\Omega_1 = u_4 &= -\, 4\lambda^2 i(\varphi_1^\star\varphi_1 + \varphi_2^\star\varphi_2);\\ m_{23} = -\, w_1 &= -\, 4\lambda^2\,(\varphi_1^\star\varphi_2 + \varphi_2^\star\varphi_1),\\ m_{31} = -\, w_2 &= +\, 4\lambda^2 i(\varphi_1^\star\varphi_2 - \varphi_2^\star\varphi_1),\\ m_{12} = -\, w_3 &= -\, 4\lambda^2\,(\varphi_1^\star\varphi_1 - \varphi_2^\star\varphi_2);\\ m_{14} = m_{24} &= m_{34} = 0. \end{aligned}\right\} \tag{37}$$

Le « spin » m_{pq} se réduit dans ce cas à ses composantes spatiales, lesquelles ont d'ailleurs la même direction que w_r.

5. **Interactions. Particules dans un champ.** — Les lois du mouvement dans un cas d'interaction donné se déduiront du lagrangien (8) augmenté d'un terme d'interaction L_{int}, fonction des ξ, ξ^+ et x^k. Pour que la théorie soit plausible il faut qu'on puisse choisir ce dernier terme de façon à retrouver les formules classiques pour des cas connus, par exemple pour le cas du mouvement d'une charge dans un champ électromagnétique.

Considérons la manière dont le terme d'interaction L_{int} dépend des ξ et ξ^+. L'hypothèse la plus

(7) Hönl et Papapetrou (*loc. cit.*) ont proposé un modèle de ce type, mais l'ont traité comme un mécanisme dans l'espace-temps soumis aux lois de la mécanique classique. Dans la présente théorie, la « masse négative » apparaît comme apparaissent les « fréquences négatives » dans la théorie du rayonnement.

simple consiste évidemment à admettre une dépendance bilinéaire. On écrira donc

$$L_{\rm int} = \xi^+ O \xi, \tag{38}$$

où O est un opérateur invariant agissant sur les ξ, fonction des x^k, indépendant des ξ, ξ^+ et tel que $L_{\rm int}$ = réel. Sa forme la plus générale sera donc

$$O = \sum_{\alpha=1}^{16} A_\alpha \gamma \ldots = A_0 + A_\rho \gamma^\rho + \frac{i}{2} A_{\rho\sigma}(\gamma^\rho\gamma^\sigma - \gamma^\sigma\gamma^\rho) + \ldots \tag{39}$$

où $\gamma\ldots$ sont les 16 produits indépendants des γ^ρ, les A_0, A_1, ... 16 fonctions ordinaires des x^ρ, présentant les variances et les conditions de réalité requises pour rendre $\xi^+ O \xi$ invariant et réel.

Ce genre d'interaction est donc décrit par 16 fonctions ordinaires au plus. Les équations du mouvement seront dans ce cas

$$\left.\begin{aligned} &\frac{d\xi^+}{d\tau} = \lambda_\rho \xi^+ \gamma^\rho - \xi^+ O, \qquad \frac{d\xi}{d\tau} = -\lambda_\rho \gamma^\rho \xi + O\xi,\\ &\frac{dx^\rho}{d\tau} = \xi^+ \gamma^\rho \xi, \qquad \frac{d\lambda_\rho}{d\tau} = \xi^+ \frac{\partial O}{\partial x_\rho} \xi. \end{aligned}\right\} \tag{40}$$

Remarquons que $-i\xi^+\xi = \Omega_1$, reste toujours constante dans le cas général.

La variation de la *vitesse* sera donnée par

$$\frac{d}{d\tau}(\xi^+\gamma^\sigma\xi) = \frac{du^\sigma}{d\tau} = -2\lambda_\rho m^{\rho\sigma} + \xi^+(\gamma^\sigma O - O\gamma^\sigma)\xi. \tag{41}$$

La *force d'univers* se déduira en dérivant par rapport à ds la quantité de mouvement donnée par la dernière équation (40).

16. **Champ électromagnétique.** — L'interaction d'une charge e avec un champ électromagnétique $h_{\rho\sigma} = \frac{\partial A_\rho}{\partial x^\sigma} - \frac{\partial A_\sigma}{\partial x^\rho}$, de potentiel A_ρ, est du type précédent.

Définissons d'abord l'action du champ sur la particule en prenant

$$O = eA_\rho\gamma^\rho. \tag{42}$$

Les équations s'écriront

$$\left.\begin{aligned} &\frac{d\xi}{d\tau} = -(\lambda_\rho - eA_\rho)\gamma^\rho\xi, \qquad \frac{d\xi^+}{d\tau} = \xi^+(\lambda_\rho - eA_\rho)\gamma^\rho,\\ &\frac{d(\lambda_\rho - eA_\rho)}{d\tau} = eh_{\sigma\rho}u^\sigma. \end{aligned}\right\} \tag{43}$$

Elles se déduisent de celles d'une particule libre en y remplaçant comme d'habitude les moments λ_ρ par $\lambda_\rho - eA_\rho$. La dernière équation donne

$$\frac{d(\lambda_\rho - eA_\rho)}{ds} = eh_{\sigma\rho}\frac{dx^\sigma}{ds} = h_{\sigma\rho}ev^\sigma = h_{\rho\sigma}j^\sigma$$
$$= \text{force de Lorentz}, \tag{44}$$

en appelant $j^\sigma = ev^\sigma$ le courant. Remarquons que la particule étant, par hypothèse, un point géométrique sans dimensions, le courant sera uniquement un courant de convection ev^σ. Même si cette particule possède un moment électromagnétique $M_{\mu\nu}$, la contribution $\frac{\partial M_{\mu\nu}}{\partial x^r}$ de celui-ci au courant sera nulle en raison du fait que $M_{\mu\nu}$ n'est pas étalé dans l'espace.

17. **Moment électromagnétique.** — Or, admettons que la particule chargée ayant un spin possède de ce fait un moment électromagnétique qui lui est proportionnel. Cela n'est pas évident *a priori* puisque l'assimilation à un corps tournant n'est plus valable. L'interaction considérée au paragraphe précédent conduit à la force de Lorentz qui représente la totalité de l'action du champ sur la particule, mais n'introduit aucun couplage entre le champ et le moment électromagnétique, ce qui montre qu'elle est incomplète. De nouveaux termes [8] doivent apparaître dans les expressions de la force et le couple exercés sur la particule.

Nous admettons que le moment électromagnétique est proportionnel au spin de la particule et nous ferons l'hypothèse que l'on a

$$\mu_{\rho\sigma} = \frac{c\varkappa}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} \times \text{spin} \qquad (\varkappa = \text{const.}). \tag{45}$$

Le facteur multiplicatif n'est constant que lorsque $\Omega_2 = 0$ qui entraîne $u^\rho m_{\rho\sigma} = 0$, donc seulement dans *le cas où le spin n'a pas de composantes de temps dans le système au repos*, dans lequel il se réduit donc à un vecteur tridimensionnel.

Supposons également qu'on prenne égale à zéro la constante additionnelle du spin, lequel serait donc simplement égal à $\frac{1}{2} m_{\rho\sigma}$. Définissons alors l'interaction au moyen d'un opérateur

$$O = eA_\rho\gamma^\sigma - \frac{\varkappa}{4}(\gamma^\rho\gamma^\sigma - \gamma^\sigma\gamma^\rho)h_{\rho\sigma}, \tag{46}$$

où A_ρ est le potentiel du champ, $h_{\rho\sigma}$ le champ correspondant et $\varkappa$ une constante convenable. On en déduit que la force de Lorentz du paragraphe précédent est augmentée du terme supplémentaire attendu. On a en effet

$$\boxed{\frac{d(\lambda_\rho - eA_\rho)}{ds} = h_{\sigma\rho}j^\sigma + \frac{1}{2}\mu_{\alpha\beta}\frac{\partial h_{\alpha\beta}}{\partial x^\rho}.} \tag{47}$$

18. **Couple.** — Les autres équations s'écrivent

$$\left.\begin{aligned} &\frac{d\xi^+}{d\tau} = \xi^+(\lambda_\rho - eA_\rho)\gamma^\rho + \frac{\varkappa}{4}h_{\rho\sigma}\xi^+(\gamma^\rho\gamma^\sigma - \gamma^\sigma\gamma^\rho),\\ &\frac{d\xi}{d\tau} = -(\lambda_\rho - eA_\rho)\gamma^\rho\xi - \frac{\varkappa}{4}h_{\rho\sigma}(\gamma^\rho\gamma^\sigma - \gamma^\sigma\gamma^\rho)\xi. \end{aligned}\right\} \tag{48}$$

[8] Déjà considérés sous leur forme relativiste par divers auteurs.

Avec les notations précédentes, on en déduit

$$\frac{d}{ds}\left(\frac{1}{2}m_{\alpha\beta}\right)=(\lambda_\alpha-eA_\alpha)v_\beta-(\lambda_\beta-eA_\beta)v_\alpha + (\mu_{\sigma\beta}h_{\sigma\alpha}-\mu_{\sigma\alpha}h_{\sigma\beta}) \quad (49)$$

qui fait intervenir un terme supplémentaire déjà rencontré par d'autres auteurs.

Ainsi donc, on peut retrouver les résultats de l'interaction d'un électron dans un champ électromagnétique prenant une interaction du type bilinéaire $\xi^+ O \xi$ avec O égal à (46) et qui s'écrit aussi

$$O=(\gamma_\rho\partial^\rho+k)(\gamma_\sigma A^\sigma), \qquad \partial_\rho=\frac{\partial}{\partial x^\rho}. \quad (50)$$

19. Remarquons que l'opérateur ci-dessus ne contient pas de terme indépendant des γ^ρ (pas plus d'ailleurs que des termes en γ^5). L'interaction bilinéaire la plus simple est définie par

$$O=ik, \quad (51)$$

où k est une constante réelle. Les équations sont alors

$$\frac{d\xi}{d\tau}=(-\lambda_\rho\gamma^\rho+k)\xi,$$

$$\frac{d\xi^+}{d\tau}=\xi^+(\lambda_\rho\gamma^\rho-k), \qquad \frac{d\lambda_\rho}{d\tau}=0. \quad (52)$$

Si ξ_{libre} est la solution connue du cas de la particule libre $k=0$ étudiée auparavant, la solution de (52) s'écrira

$$\xi=e^{ik\tau}\xi_{\text{libre}}. \quad (53)$$

Ce genre d'interaction à laquelle nous avons déjà fait allusion au paragraphe 8 n'agit que sur les ξ et n'affecte pas les grandeurs réelles mesurées dans l'espace-temps.

Plus compliquée apparaît le cas (51) avec un k fonction des x^ρ.

Enfin, nous n'avons considéré jusqu'à présent que des termes d'interaction bilinéaires en ξ et ξ^+. Il est clair que d'autres cas sont possibles et la forme de L_{int} en fonction des ξ et ξ^+ permettra ainsi d'établir un critère de classement des interactions par ordre de complication croissante. On obtiendra ainsi en particulier des mécaniques classiques non linéaires qui ne seront peut-être pas dépourvues d'intérêt.

Manuscrit reçu le 8 septembre 1953.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM. TOME 15, FÉVRIER 1954, PAGE 72.

SUR LE DÉNOMBREMENT AUTOMATIQUE D'UNE DISTRIBUTION STATISTIQUE D'INTERVALLES DE TEMPS (APPLICATION A L'ÉMISSION α DU Po)

Par M. Roland CHÉRY,
Assistant à l'Institut de Physique atomique (Université de Lyon).

Sommaire. — Les dispositifs décrits dans cet article ont été réalisés pour reprendre l'étude de la distribution dans le temps des émissions radioactives, mais il serait facile de les adapter à l'étude de n'importe quel phénomène distribué statistiquement dans le temps. Chaque phénomène étant repéré par un point lumineux sur l'écran d'un tube cathodique, on peut les utiliser éventuellement pour la recherche de corrélations entre l'apparition de deux phénomènes statistiques, chacun d'eux contrôlant la position du spot suivant une coordonnée.

Depuis 1936 toute une série de travaux sur la distribution dans le temps des désintégrations α a été réalisée à l'Institut de Physique atomique de Lyon sous la direction de J. Thibaud [1], [2], [3], [4]. Le caractère statistique de cette distribution reconnue dès 1905 par Schweidler pour la loi de décroissance radioactive, se manifeste en outre par les fluctuations radioactives, écarts à la loi théorique précédente, analysées par Batemann et par la loi de distribution des intervalles de temps entre émissions radioactives connue sous le nom de loi de Marsden-Baratt.

Les premières vérifications expérimentales de ces lois se situent vers 1910, avec les travaux de Rutherford et Geiger sur les fluctuations radioactives et ceux de Marsden-Baratt sur la loi des intervalles. Mais c'est en 1920 seulement que Mme Curie [5] réalise la première vérification de la loi des intervalles à partir d'enregistrements automatiques. Dans les années qui suivirent, Kuztner [6] releva des écarts anormaux entre loi théorique et observations. Tous ces travaux se caractérisent par l'emploi de détecteurs d'angle solide très délié si bien qu'une très faible partie du rayonnement de la source est étudiée.

Le premier, Prokowski [7] utilise la collection

des particules α sous des angles voisins de 4π. Feather puis Curtiss reprennent ses travaux. Dans une première série d'observations sur la loi des écarts, ce dernier est amené à mettre en doute l'hypothèse de l'indépendance entre les émissions α mais il ne peut, par la suite, confirmer ses premiers résultats [8].

Ces études comportent, à la base, une même source d'erreurs, à savoir l'imperfection des méthodes expérimentales utilisées pour le comptage des particules α. C'est pourquoi il parut intéressant à J. Thibaud de reprendre ces études en profitant des améliorations des méthodes de détection.

La source radioactive est toujours le ^{210}Po car sa période assez longue (138 jours) d'une part, et la stabilité de son produit de désintégration d'autre part, rendent son emploi particulièrement pratique. Dans le premier dispositif, les particules de désintégration sont détectées au moyen d'une chambre d'ionisation reliée à un amplificateur proportionnel, puis à un oscillographe mécanique Dubois dont les élongations s'enregistrent sur un film cinématographique se déroulant à vitesse très constante [9].

Ses premières conclusions relatives à la distribution de Marsden-Baratt sont les suivantes :

Le classement par ordre de grandeur croissante des intervalles entre émissions α fait apparaître des classes d'intervalles privilégiés et des classes d'intervalles défavorisés pour lesquelles la distribution observée présente un excès ou un défaut par rapport à la distribution statistique théorique prise comme terme de comparaison. Ces résultats semblent confirmés par l'étude des distributions des plus grandes valeurs [4]. Au caractère statistique de la distribution paraît donc se superposer un caractère périodique.

Pour étudier le mécanisme de cette périodicité, J. Thibaud envisage l'étude des sommes de deux, trois, etc. intervalles consécutifs [10]. Il obtient ainsi une confirmation du caractère anormal de la distribution. Mais ces études nécessitent le dépouillement de longueurs importantes de films qu'il est intéressant de chercher à éviter [11], tout particulièrement pour s'affranchir des erreurs dues à l'intervention de l'opérateur.

Dans le premier dispositif employé [12] la photographie de l'écran d'un oscillographe révèle directement par des gradations dans la densité du cliché la distribution des intervalles. La tension, fonction uniforme de l'intervalle de temps, s'obtient de la façon suivante (*fig.* 1) : le contact électromécanique étant dans la position A le condensateur C est relié à la batterie d'accus de tension E à travers une très grande résistance R. Si au temps $t = 0$ le condensateur est bien déchargé la d. d. p. à ses bornes est

$$V = E\left(1 - e^{-\frac{t}{\tau}}\right), \qquad \tau = CR$$

et si $\tau \gg t$, V est une fonction pratiquement proportionnelle au temps. (Ainsi pour $t = 0{,}5$ s et $\tau = 40$ s l'erreur de linéarité est seulement de l'ordre de 0,6 pour 100 par défaut.) Si, au temps t, une impulsion électrique provenant du détecteur de particules déplace le contact mécanique de la position A à la position B, le condensateur C se décharge dans la faible résistance r. La variation de tension ainsi produite est ainsi transmise à un oscillographe cathodique. Ce système présente les défauts suivants : le contact mécanique est imparfait et d'inertie non négligeable et on doit employer nécessairement un condensateur C de valeur élevée dont le diélectrique imparfait produit un phénomène de traînage : des charges électriques pénétrant dans celui-ci en ressortent avec un retard plus ou moins grand si bien que les tops courts consécutifs à des tops grands voient les élongations fortement accrues.

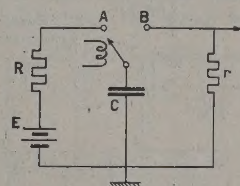


Fig. 1.

Tous ces défauts ont été éliminés par l'utilisation de moyens électroniques.

Deux ensembles d'appareillage ont été ainsi réalisés, l'un pour cadences lentes, l'autre pour cadences plus rapides, que nous allons décrire successivement :

A. — **Premier ensemble pour cadence lente.**

Il comprend un certain nombre de dispositifs [13] que l'on peut classer suivant leur rôle fonctionnel. Nous avons :

a. Un dispositif transformant l'évènement aléatoire en impulsion électronique. C'est, dans notre cas, une chambre d'ionisation à impulsions suivie d'un amplificateur adéquat.

b. Un dispositif délivrant une impulsion d'amplitude caractéristique de la classe de la valeur de la variable aléatoire considérée. Actuellement cette variable aléatoire est l'intervalle de temps qui sépare deux émissions α détectées par le compteur. On obtient une tension qui est fonction linéaire de ce temps en chargeant un condensateur avec un courant d'intensité constante entre deux impulsions électriques délivrées par la chambre d'ionisation. Ces impulsions provoquent évidemment la décharge complète du condensateur.

c. Un dispositif qui classe sélectivement les impulsions précédentes suivant leur amplitude.

Nous avons utilisé pour cela un oscillographe cathodique sur l'une des paires de plaques duquel on applique les impulsions considérées. Nous agissons sur la grille du tube cathodique de façon que seul le sommet de l'impulsion, dont la position sur l'écran caractérise la valeur de celle-ci, apparaisse sous forme d'un point lumineux. Pour noter l'apparition de celui-ci nous avons besoin de :

d. Un dispositif d'enregistrement et de conservation. Le plus simple pour ce but est de faire appel au film photographique dont la densité de noircissement en un point donné sera fonction du nombre d'impulsions enregistrées en ce point.

Enfin pour extraire les données du film il faut disposer :

e. D'un dispositif de lecture de l'enregistrement.

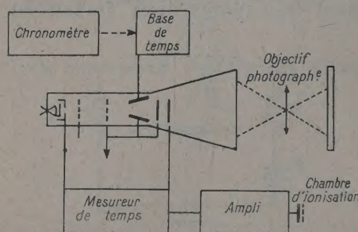


Fig. 2.

Nous emploierons dans ce but une analyse photométrique de celui-ci.

Notons pour terminer l'utilisation de dispositifs auxiliaires :

f. Une échelle de 10 pour le comptage des impulsions du compteur.

g. Une base de temps d'oscillographe dont on applique la tension en dent de scie sur la paire de plaques demeurée libre du tube cathodique. Cela permet d'éviter la surexposition du film. Enfin :

h. Un chronomètre électronique permet de stabiliser rigoureusement par synchronisation la fréquence de cette base de temps pour la recherche d'éventuelles multipériodicités sous-jacentes au rythme statistique.

La figure 2 schématisée, visualise la disposition de l'ensemble électronique.

Nous allons maintenant examiner la réalisation de chacun de ces dispositifs. Commençons par le dispositif détecteur :

Chambre d'ionisation et amplificateur d'impulsions. — La chambre d'ionisation utilisée est du type décrit page 180 du livre : *Quelques techniques actuelles en Physique nucléaire*. C'est une chambre de bonne géométrie, à électrodes planes fonctionnant dans l'air. On évite ainsi plus facilement la contamination des parois provoquant des impulsions perturbatrices. Le fonctionnement est alors nécessairement à collections d'ions et l'on a pris diverses mesures pour accroître la vitesse de collections de ceux-ci. La chambre est peu profonde, 4 mm et l'on applique sur les électrodes une tension donnant un champ de l'ordre de 2 000 V/cm. On peut ainsi espérer un temps de montée de l'impulsion sur l'électrode collectrice de l'ordre de 1/3 000e de seconde, suffisant pour les cadences des sources radioactives employées. La haute tension de la chambre est obtenue à partir du secteur, par redressement et stabilisation électronique. Elle est soigneusement débarrassée de tout résidu-secteur par un filtre RC disposé très près de la chambre et formé d'une résistance de 2 MΩ et de deux condensateurs en série de 25 F (1500 V).

Pour réaliser l'amplificateur d'impulsions nous nous sommes inspirés des techniques actuelles en cette matière et nous avons utilisé des tubes à forte pente. Le premier de ceux-ci est un 954 utilisé en lampe électromètre. Il fonctionne avec grille flottante reliée directement à l'électrode collectrice de la chambre isolée à l'ambre. On évite ainsi les perturbations introduites par les résistances de grille (effet Johnson). De plus, la haute tension appliquée sur la chambre est positive, permettant ainsi de recueillir les ions positifs, ce qui assure une décharge plus rapide de la grille que si l'on recueillait des ions négatifs. Les tensions de grille écran et de plaque sont faibles pour diminuer le bruit de fond, et la tension de chauffage de 2,5 V a été déterminée empiriquement de façon à donner le rapport $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$ le plus favorable. Deux découplages à très forte constante de temps sont naturellement prévus et toutes les connexions sont soudées directement sur les broches du tube. Il en est d'ailleurs de même pour toutes les connexions de l'ampli.

Le deuxième tube est un 6 AK 5 dont l'écran est à 90 V seulement. Une contre-réaction d'intensité d'environ 60 pour 100 par résistance de cathode non shuntée a été introduite pour diminuer les distorsions et accroître la stabilité de fonctionnement. La cellule de découplage du circuit plaque ($R = 10$ kΩ, $C = 25$ pF) compense l'insuffisance de la constante de temps de la liaison *RC* du circuit grille. On évite ainsi le phénomène de double différenciation qui fait apparaître un contrecoup gênant dans l'impulsion de sortie.

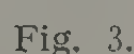
Du côté des fréquences élevées, la fréquence théorique de coupure est de l'ordre de 500 kc/s ($R = 10^4$, $C = 30\,\Omega\mu$F), largement suffisante pour reproduire fidèlement les variations de tension sur l'électrode collectrice.

Ces deux tubes sont suivis d'une cellule de différenciation *RC* ayant 50 μs de constante de temps. On ne peut penser obtenir ainsi une impulsion de sortie rigoureusement proportionnelle à l'énergie perdue dans la chambre par la particule α, mais

nous désirons essentiellement une impulsion aussi brève que possible et la proportionnalité ci-dessus est d'importance secondaire.

Les deux tubes suivants sont des *R* 219 équivalents au 1851. Ils sont montés suivant les mêmes principes que le 6 AK 5.

Le schéma de montage est visible (*fig.* 3). On


Fig. 3.

obtient ainsi avec la chambre ci-dessus décrite et dans les conditions de fonctionnement indiquées une impulsion inférieure au 1/2500e de seconde ayant une amplitude d'une trentaine de volts. Le bruit de fond n'est que de quelques volts.

Ce type d'amplificateur qui bénéficie des progrès faits en électronique depuis 1940 peut être intéressant pour travailler dans des gaz électronégatifs comme l'oxygène, avec lesquels on ne peut employer que des chambres lentes ou encore avec une chambre différentielle type Rutherford Wardet Wynn Williams. Nous l'utilisons comme compteur de particules α.

Mesureur d'intervalles de temps. — Étudions maintenant le dispositif qui délivre une impulsion


Fig. 4.

d'amplitude proportionnelle aux durées des intervalles de temps à enregistrer.

Tout d'abord, pour s'affranchir du bruit de fond du compteur et éliminer les impulsions trop faibles provenant de particules α ayant pris naissance dans les couches profondes de la source ou ayant pénétré dans le support nous disposons d'un discriminateur. C'est un univibrateur formé d'une double triode ECC 40 montée suivant le circuit de Schmitt [14]. Le schéma est visible sur la figure 4.

Si l'on applique une impulsion positive en E, elle ne provoque la bascule des états d'équilibre du système que si elle dépasse un certain seuil réglable par la polarisation du tube correspondant et la durée de l'impulsion rectangulaire délivrée en S est légèrement plus grande que celle durant laquelle l'impulsion d'attaque est supérieure à la valeur seuil. Ceci nous assure de n'avoir qu'une seule impulsion en S par impulsion d'entrée, ce qui ne serait pas forcément le cas si l'on employait un univibrateur ayant une durée propre de séjour dans l'état métastable.

L'impulsion disponible en S à la sortie du discriminateur provoque l'apparition d'impulsions convenables dans le mesureur de temps proprement dit dont la figure 5 *a* reproduit le schéma.

Elle attaque en 1 l'univibrateur I qui développe en 2 et 5 deux impulsions rectangulaires dont la durée est définie essentiellement par la constante du circuit de relaxation *RC* prise égale à 100 μs.

Fig. 5.

En 2 l'impulsion est positive et on l'utilise pour actionner l'univibrateur II qui délivre en *W* une autre impulsion rectangulaire positive d'une durée de 50 μs seulement.

Pour que cette impulsion soit unique, celle obtenue en 2 est très fortement différenciée par un circuit *RC* ayant une constante de temps de quelques microsecondes et en 3, deux impulsions très brèves, la première positive, la seconde négative. L'univibrateur II n'est sensible qu'à la première. L'impulsion en *W* est destinée à signaler la fin de l'intervalle de temps en cours de mesure. Nous la reprendrons tout à l'heure.

En 5 on trouve une impulsion négative simultanée avec l'impulsion 2. On la différencie par un circuit *RC* ayant une constante de temps de 10 μs ($R = 50\,000\ \Omega$, $C = 200\ \Omega\mu F$). On obtient ainsi en 6 un top négatif suivi 100 μs après d'un top positif. Un diode 6 H 6 court-circuite la résistance *R* lors du top négatif et il ne demeure en 7 que le top positif qui sera utilisé pour ramener à sa position de référence le système mesureur de temps proprement dit. La figure 5 *b* résume tout le fonctionnement de ces déclencheurs électroniques. On

constate que l'impulsion W qui signale la fin de l'intervalle de temps précède le top 7 de 50 μs. Cela s'est révélé nécessaire pour le bon fonctionnement du dispositif de sélection.

Les intervalles de temps sont mesurés par la tension apparaissant aux bornes d'un condensateur C chargé par un courant d'intensité constante. Celui-ci s'obtient, comme c'est bien connu, en disposant une penthode en série avec C. Pour améliorer l'étendue de la zone de linéarité des caractéristiques du tube et cette linéarité elle-même, on porte l'écran à la tension la plus élevée qu'il puisse admettre et l'on règle la valeur de l'intensité de charge par la polarisation grille. La décharge de C et son retour à la position de référence se fait par un thyratron EC 50 en parallèle sur C. Une pile de polarisation de — 9 V porte sa grille à un potentiel suffisamment négatif pour que le rapport d'ouverture du tube ne puisse être atteint que sous l'influence d'une impulsion positive extérieure sur sa grille. Ceci est rendu nécessaire pour éviter des mesures erronées d'intervalles de temps longs au bout desquels la tension aux bornes de C serait suffisante pour déclencher automatiquement le thyratron comme dans les bases de temps ordinaires d'oscillographes. La résistance de plaque de 400 Ω permet un courant de pointe, à l'ouverture aussi grande que possible, tout en étant compatible avec les caractéristiques du tube. C'est précisément en raison de la forte valeur du courant de pointe admissible qu'on a choisi ce dispositif plutôt qu'un montage dérivé de celui d'une base de temps type Pucckle car les intervalles de temps que l'on mesure sont assez longs (jusqu'à quelques secondes) et le courant de charge ne pouvant descendre au-dessous d'une valeur limite sans présenter de fortes variations relatives, cela conduit à une valeur de C assez élevée et à des quantités d'électricité importantes qu'il faut écouler aussi rapidement que possible. Par exemple si l'on veut mesurer un intervalle de temps de 1 s par différence de potentiel de 100 V aux bornes d'un condensateur C de 1 μF, il faut un courant de charge de 100 μA seulement et la quantité d'électricité prise par C est de 10^{-4} Cb. Pour éliminer celle-ci en 10^{-4} s il faut un courant de pointe de l'ordre de l'ampère.

Le condensateur C est soumis ici à un régime de charge et de décharge au hasard et non à un régime périodique comme dans les bases de temps ordinaires. Il en résulte que les phénomènes d'hystérésis du diélectrique prennent une importance considérable. Le diélectrique conserve des charges résiduelles et la tension aux bornes de C ne revient pas à sa position de référence. Un intervalle de temps court après un long paraît ainsi allongé. Les condensateurs au papier paraffiné et les condensateurs électrochimiques doivent être rejetés pour cette raison. L'idéal serait un condensateur à air, mais la forte valeur exigée le rend irréalisable. Finalement des lames de mica argentées de faible épaisseur ont donné toute satisfaction pour les cadences utilisées.

Sélecteur d'intervalles de temps. — L'organe qui classe sélectivement les tensions proportionnelles aux intervalles de temps suivant leur valeur est l'oscillographe cathodique OE 411 (*fig.* 2). Son alimentation est classique. On a toutefois, pour obtenir une bonne stabilité de fonctionnement, alimenté l'ensemble par l'intermédiaire d'un transformateur à fer saturé qui divise par 10 les variations du secteur. Pour s'affranchir de la modulation parasite du faisceau électronique sous l'influence d'un résidu de 50 périodes sur le Wehnelt on a réalisé les deux découplages de cathode et de Wehnelt avec une même constante de temps. Comme on le voit sur la figure 2 la différence de potentiel aux bornes du condensateur C est appliquée sur l'une des paires de plaques. La liaison est directe car une liaison RC produit un déplacement du zéro du fait de la composante continue variable qui apparaît aux bornes du condensateur.

Le signal précédemment disponible en W est appliqué par liaison RC au Wehnelt du tube cathodique normalement bloqué par une tension négative suffisante. On voit donc que l'intervalle de temps se mesure sur l'écran par la distance entre la position de référence du spot qui correspond à la tension résiduelle conservée par le condensateur C déchargé à travers la thyratron et le point où apparaît une scintillation lumineuse due à l'ouverture durant 50 μs du faisceau du tube cathodique.

En fait, différentes difficultés apparaissent pour obtenir un point lumineux correct. Tout d'abord, il faut éviter le traînage de la scintillation et c'est pour cela que le top qui provoque la décharge de C a été retardé par rapport à l'impulsion de marquage du Wehnelt. Ensuite, du fait des défauts d'alignement des lentilles électrostatiques que constituent, en définitive, les divers éléments du tube, celui-ci présente des défauts de concentration et de l'astigmatisme. Avec le tube employé, on a obtenu une bonne correction de ceux-ci en portant l'anode d'accélération à 140 V par rapport à la masse générale. Une solution plus efficace mais beaucoup plus compliquée serait l'emploi d'une chaîne d'alimentation du tube avec correction d'astigmatisme et d'une attaque des plaques de déviation par des amplificateurs symétriques à courant continu.

Enfin un autre défaut apparaît qui exige une correction *a posteriori*, c'est la non-linéarité de la courbe de sensibilité qui fait que les grandes différences de tension produisent des déviations proportionnellement plus faibles que les petites.

Dispositif d'enregistrement et de conservation. — Ces points lumineux doivent être main-

tenant enregistrés en conservant leur position respective. Pour cela, on photographie l'écran du tube. L'enregistrement se présente sous l'aspect d'un nuage de points. Naturellement, on veut pouvoir déduire des variations de densité du cliché en des points différents des renseignements sur le nombre de scintillations en ces points et quelques précautions doivent être observées.

Il faut, tout d'abord, éviter la saturation du film photographique. Cela implique une limitation du nombre des intervalles que l'on peut enregistrer sur un même cliché. Pour que cette limitation ne soit pas trop sévère, on applique une tension en dent de scie sur la paire de plaques du tube cathodique restée disponible. On accroît ainsi la surface utile de l'écran et celle de la plaque photo. Néanmoins, dans le montage réalisé, on est limité dans cette voie par le résidu de distorsion trapézoïdale du tube.

Quel rapport existe-t-il maintenant entre la densité de noircissement du cliché et le nombre de scintillations ?

Soit I l'intensité lumineuse produite sur le film par une scintillation et t le temps d'illumination. L'éclairement subit par le film en ce point est

$$E = It$$

et s'il s'est produit n scintillations en ce point nous avons pour la densité de noircissement d'après une formule bien connue [15]

$$D = \gamma(\log_{10} nE - \log_{10} i) \quad (i, \text{ inertie du film}).$$

Cette formule vaut pour la partie linéaire de la courbe caractéristique $D = f(\log_{10} E)$. En première approximation, la densité de noircissement est donc proportionnelle au logarithme de nombre des impulsions. Mais cela n'est plus vrai pour les fortes densités (saturation) et pour les faibles où la courbe $D = f(\log E)$ n'est plus assimilable à une droite.

Pour éviter une saturation trop rapide on a choisi un γ assez faible et l'on règle l'éclairement par scintillation à sa valeur optimum en agissant sur la hauteur de l'impulsion attaquant le Wehnelt. Le temps d'illumination étant limité (50 μs) de même que l'intensité lumineuse par suite de la saturation du phénomène de fluorescence de l'écran du tube, il faut utiliser un film rapide. Il y a intérêt à n'avoir qu'un voile aussi faible que possible. Il est aussi désirable que le γ demeure constant pour les faibles éclairements. Le film pour enregistrement sonore à densité variable apparaît ainsi le plus adéquat.

Dispositif de lecture des clichés. — Pour étudier la distribution des intervalles de temps, il faut extraire du cliché obtenu une courbe que l'on puisse comparer avec la théorie. Celle-ci fait intervenir le nombre d'intervalles de temps d'une durée donnée et cette durée elle-même. On peut étalonner directement les déviations du spot en temps à l'aide d'un chronomètre électronique (*voir* ci-dessous). Quant au nombre des intervalles de temps d'une durée donnée, il faut le déduire de la densité totale de noircissement sur une direction parallèle à la déviation produite par la tension en dent de scie sur la seconde paire de plaques.

Un photomètre photographique permet d'obtenir ce résultat. Son principe est le suivant : on projette le cliché à l'aide d'un agrandissement photographique sur un film à grand contraste, type Pathélith, recouvert d'un coin absorbant en verre neutre dont les isopaques sont parallèles à la direction des intervalles de temps du cliché. Film et coin sont solidaires d'un chariot animé par un entraînement à vis d'un mouvement uniforme de translation perpendiculaire aux isopaques du coin photométrique.

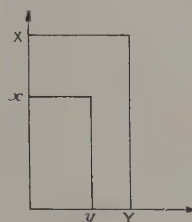


Fig. 6.

En l'absence de celui-ci, l'éclairement sur une bande du film Pathélith parallèle au mouvement de translation du chariot est proportionnel à la densité moyenne d'une portion du cliché sur laquelle sont enregistrés des points correspondant à des intervalles de temps égaux. Par suite cet éclairement est fonction du nombre total de ces intervalles de temps. La présence du coin photométrique permet, par le jeu des propriétés photographiques du film Pathélith d'obtenir une hauteur de couche impressionnée d'autant plus élevée que la densité moyenne de la bande du cliché correspondante est plus faible. On peut se rendre compte de la liaison entre cette hauteur et le nombre total des intervalles de temps d'une durée donnée $N(x)$ de la façon suivante :

On a vu précédemment que la densité du cliché en un point (x, y) était approximativement :

$$D(x, y) = \gamma[\log n(x, y)E - \log i].$$

Soit encore

$$D(x, y) = \gamma \log n(x, y),$$

en supposant que l'éclairement E par impulsion est égal à l'inertie photographique du film.

L'opacité $O(x, y)$ en ce point du cliché est

$$O(x, y) = 10^{D(x,y)} = n(x, y)^{\gamma}.$$

Soit I_0 l'intensité lumineuse produite par la source de l'agrandisseur photographique sur le film Pathé-

lith en l'absence du cliché et du coin. Si l'on introduit le premier, l'intensité lumineuse $I(x, y)$ en un point P du film correspondant au point (x, y) du cliché devient

$$I(x, y) = \frac{I_0}{O(x, y)} = I_0\, n(x, y)^{-\gamma}.$$

Quand le film se déplace le point P est éclairé successivement par la lumière transmise à travers tous les points $x =$ const. du cliché. Soit T le temps nécessaire pour que P soit éclairé par tous les points $x =$ const. du cliché de largeur Y. La durée pendant laquelle il est éclairé par un élément dy du cliché est $\frac{T}{Y}\,dy$. L'éclairement reçu en P pendant ce temps est

$$E(x, y) = \frac{T}{Y} I_0\, n(x, y)^{-\gamma}\, dy; \qquad I_0 \frac{T}{Y} = E_0;$$
$$= E_0\, n(x, y)^{-\gamma}\, dy.$$

L'éclairement reçu en P pendant toute la translation est

$$E(x) = E_0 \int_0^Y n(x, y)^{-\gamma}\, dy.$$

Cet éclairement est le même pour tous les points P correspondant à des points $x =$ const. du cliché.

Si l'on recouvre maintenant le film Pathélith d'un coin photométrique de constante K dans les conditions indiquées ci-dessus; et si l est la distance à l'arête du coin d'un point d'ordonnée x, la densité du coin en cette position est

$$D(l) = Kl$$

et

$$\text{éclairement transmis} = \text{éclairement initial} \times \text{opacité}$$
$$= E_0 \int_0^Y n(x, y)^{-\gamma}\, dy \,.\, 10^{-Kl}.$$

Et par suite l'éclairement reçu par le point (l, x) du film Pathelith est

$$E(l, x) = E_0 \,.\, 10^{-Kl} \int_0^Y n(x, y)^{-\gamma}\, dy.$$

On peut caractériser le film à grand contraste Pathélith par les conditions suivantes :

$$E(x, l) < I \text{ (inertie du film)} \rightarrow \text{densité de noircissement} = 0,$$
$$E(x, l) > I \text{ (inertie du film)} \rightarrow \text{densité de noircissement} = \infty.$$

Par conséquent la ligne de partage se produit pour une abscisse l telle que

$$I = 10^{-Kl} E_0 \int_0^Y n(x, y)^{-\gamma}\, dy;$$

d'où

$$l = \frac{1}{K} \log_{10} \left[\frac{E_0}{I} \int_0^Y n(x, y)^{-\gamma}\, dy \right]$$
$$= \frac{1}{K} \log_{10} \frac{E_0}{I} - \frac{\gamma}{K} \log_{10} \int_0^Y n(x, y)\, dy,$$
$$l = \frac{1}{K} \log_{10} \frac{E_0}{I} - \frac{\gamma}{K} \log_{10} N(x),$$

$N(x)$, nombre total des impulsions de durée constante x.

Ainsi en première approximation l est fonction linéaire du $\log_{10}$ de $N(x)$. D'ailleurs on voit facilement que si L est l'abscisse de noircissement du film pour $N(x) = 0$ nous avons alors

$$L - l = d = \frac{\gamma}{K} \log_{10} N(x).$$

Il est facile de régler expérimentalement l'intensité lumineuse de la lampe et la vitesse de translation pour que L soit une longueur convenable. Le film est ensuite développé dans un révélateur aussi dur que possible. La valeur de cette méthode d'intégration dépend évidemment de la qualité du coin qui doit avoir des isopaques rigoureusement parallèles et équidistantes si l'on veut éviter des corrections pénibles.

Chronomètre électronique. — Mais l'appareillage ci-dessus permet aussi des enregistrements un peu différents : Ainsi les travaux antérieurs de l'Institut de Physique atomique sur la distribution des intervalles de temps de l'émission α du Po suggèrent que, suivant leurs classes, ces intervalles peuvent être soit privilégiés, soit défavorisés par rapport à la distribution théorique. La distance entre deux intervalles privilégiés ou défavorisés se situe vers $0{,}3\, t_0$, t_0 étant l'intervalle moyen [4]. Cette structure induit à penser que leur succession dans le temps ne doit pas être quelconque mais présenter un certain rythme. Après un intervalle donné, l'observation de certains autres doit être très improbable. On peut espérer déceler directement ces anomalies par rapport à la distributiou théorique en choisissant une fréquence appropriée pour le balayage du tube cathodique. Pour assurer à cette fréquence une stabilité suffisante, on synchronise l'oscillateur à relaxation de la base de temps avec un chronomètre électronique conçu de façon à pouvoir fournir des intervalles de temps de durées très diverses.

La fréquence stabilisée du chronomètre est fournie par un oscillateur électronique à 1000 périodes avec un diapason en élinvar enfermé dans un thermostat. Pour une variation de température de l'ordre du degré dans le thermostat; ce générateur après avoir atteint son régime de fonctionnement, stabilise le 1000 périodes à $5 \,.\, 10^{-6}$ près. Un ensemble d'amplificateurs dont un push-pull final délivre une puissance suffisante pour alimenter le moteur synchrone. Celui-ci comprend un rotor à 100 dents qui se déplace devant les 10 pôles d'un stator.

Avec une alimentation à 1000 périodes, la vitesse de rotation du rotor est donc de 10 t/s. Une roue dentée de 100 dents, calée sur l'axe du rotor tourne devant un néon alimenté par le 1000 périodes. Le dispositif stroboscopique ainsi réalisé permet de contrôler le bon fonctionnement du moteur et de

s'assurer de l'absence du phénomène de « pompage ». Ce moteur est solidaire d'un disque en aluminium percé, sur des pistes de diamètres différents, de trous régulièrement espacés, à l'aide d'une machine à diviser. Avec les pistes de 1, 4, 5, 6, 7, 8 trous on peut définir des intervalles de temps de 1/10e, 1/40e, 1/50e, ... de seconde. Pour obtenir des impulsions électriques marquant le début de chacun de ces intervalles, on éclaire à travers ces trous, une cellule photoélectrique. On forme pour cela sur le disque, l'image du filament d'une lampe électrique. On choisit un filament d'une courbure telle que son image épouse convenablement la circonférence du trou. On obtient ainsi aux bornes de la cellule une impulsion trapézoïdale dont on peut apprécier le temps de montée : l'image du filament a une largeur d'environ 1/10e de millimètre. La piste de six trous ayant un diamètre d'environ 20 cm, deux trous sont distants d'environ 10 cm et cette distance est parcourue en 1/60e de seconde, le temps de montée de l'impulsion est donc de l'ordre de 1/6e de 10^{-4} s. On amplifie cette impulsion trapézoïdale par les moyens habituels; et pour obtenir un signal de synchronisation avec une bonne définition, on la différencie fortement par un système *RC* ayant une constante de temps de 10^{-4} s? L'impulsion positive de synchronisation a ainsi une durée totale de l'ordre du temps de montée et comme la synchronisation se fait sur la partie montante, on voit qu'un balayage de 1/60e de seconde sur la base de temps est ainsi défini à 10^{-5} s près. Pour augmenter les possibilités du chronomètre, un dispositif multiplicateur permet à partir du 1000 périodes d'obtenir du 500 et du 1500 périodes. La roue phonique alimentée à ces fréquences tourne à 5 ou 15 t/s et l'on triple ainsi le nombre des intervalles de temps que l'on peut définir avec un même disque. Un enregistrement fait dans ces conditions avec une fréquence de balayage convenable révèlerait l'exactitude des opinions émises ci-dessus par des zones de points de concentration anormale. La distribution suivant l'axe des y ne serait plus uniforme.

Diviseur d'impulsions à rapport variable. — Par ailleurs, la succession des intervalles privilégiés et défavorisés en progression arithmétique de raison peu différente de $0,3\,t_0$ suggère d'analyser non seulement les distributions initiales mais aussi les sommes de 3 et d'une manière plus générale les sommes de n intervalles consécutifs. Les diviseurs électroniques à basculeur se prêtent mal à cette utilisation, c'est pourquoi on a réalisé un dispositif permettant d'enregistrer sans difficulté des sommes quelconques. Pour chaque top marquant la fin d'un intervalle de temps on charge un condensateur C d'une quantité d'électricité constante. La tension aux bornes est donc une fonction en escalier du nombre des intervalles. En jouant sur la tension appliquée à la grille d'un thyrathron qui shunte C, on peut décharger celui-ci toutes les n « marches » et obtenir ainsi un top pour n à l'entrée.

La figure 7 donne le schéma de réalisation.

Le top d'entrée bascule un univibrateur qui délivre une impulsion rectangulaire positive de durée et de hauteur bien définie. Celle-ci agit sur la grille d'un tube à forte pente et cut-off rapproché normalement fermé, à travers une liaison à résistance compensée en haute fréquence. Ce dispositif est nécessaire pour éviter les variations de potentiel de référence de la grille en fonction de la cadence des impulsions. Pour un fonctionnement correct il faut d'autre part que la durée de l'impulsion rectangulaire de charge soit légèrement inférieure au temps d'ouverture du thyratron. C'est donc celui-ci qui détermine le temps de résolution de l'appareil, environ 10^{-4} s, suffisant pour les conditions d'emploi.

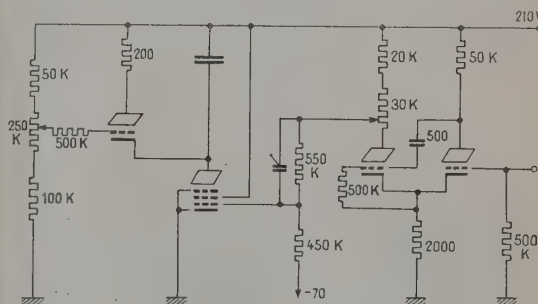


Fig. 7.

B. — Deuxième ensemble [16].

Alors que le premier permet l'enregistrement des distributions d'intervalles dans leur totalité, celui-ci répond aux buts suivants :

a. Étudier les petits intervalles de temps d'une durée de l'ordre du 1/100e de l'intervalle moyen. Une étude préliminaire de J. Thibaud paraissait en effet révèler des anomalies vers ces petits intervalles.

b. Enregistrer corrélativement la distribution des intervalles de temps qui suivent ceux d'une classe donnée *a priori*.

Nous disposons pour cela des appareils suivants :

1. **Etude des petits intervalles de temps.** — *Compteur proportionnel.* — Pour éviter des enregistrements trop longs, nous sommes conduits, quand l'étude est restreinte à certaines classes d'intervalles, à augmenter la cadence du comptage. De plus, dans la mesure de petits intervalles de temps de l'ordre de 5.10^{-4} s il est absolument nécessaire que l'impulsion α soit à montée rapide. Il faut donc un détecteur à collection d'électrons. Nous avons choisi un compteur proportionnel à

amplification par le gaz pour des raisons de simplicité. Il est visible sur la figure 8.

Comme on voit il est entièrement démontable pour permettre le nettoyage facile du fil et de la cathode et l'introduction de la source. Celle-ci peut être manœuvrée de l'extérieur et introduite ou sortie de la zone de comptage. Le remplissage se fait avec de l'argon à 10 pour 100 de CO_2 jusqu'à 50 cm Hg.

La haute tension fournie par alimentation 2500 C. E. A. est appliquée au fil. L'impulsion est transmise à l'amplificateur par l'intermédiaire d'une

Fig. 8.

cathode-follower visible sous le compteur. L'ampli est soit un ampli linéaire 204 β de « l'Atomic Instrument Company », soit l'ampli d'un oscillographe Ribet-Desjardins, modèle 202 B précédé d'un préamplificateur de gain 10.

Mesureur d'un petit intervalle de temps. — Nous avons vu précédemment deux sources d'erreurs dans la mesure des intervalles de temps :

a. La durée de top de marquage appliquée au wehnelt du tube oscillographe.

b. Le temps de décharge du condensateur, dans le thyratron et le temps de désionisation de celui-ci.

Fig. 9 *a*.

Pour mesurer des intervalles de temps de l'ordre de 5.10^{-4} nous avons donc dû ramener la durée du top de marquage à quelques microsecondes (8 μs) et abandonner la décharge du condensateur par thyratron pour adopter des tubes à vide (système de Puckkle).

Fig. 9 *b*.

Le schéma est visible (*fig.* 9). Le principe de fonctionnement est analogue au précédent (*fig.* 5), la ligne à retard introduisant un retard systématique de 1 μs pour éviter des « traînées » sur l'écran de l'oscillographe.

La figure 10 donne le schéma d'un autre dispositif de mesure d'intervalle de temps. Le condensateur C se charge à travers une résitance R et la cathode-follower applique par l'intermédiaire de C_1 une

Fig. 10.

tension sur R égale, en principe, à la tension prise par C. Celle-ci est, en conséquence, fonction linéaire du temps. La linéarité est excellente de l'ordre de 5 pour 1000 pour une tension maxima sur C de 70 V; avec une haute tension de 210 V.

Le tube EF 42 de décharge est commandé par un ECC 40 monté en univibrateur. L'origine d'un intervalle de temps est donc retardé d'un temps constant, égal à la pseudo-période de l'univibrateur, par rapport à la fin de l'intervalle précédent, fait qui n'avait pas lieu avec le dispositif précédent.

L'emploi d'un temps d'illumination limité à 8 μs nous oblige à utiliser un tube oscillographique à post-accélération. La tension triangulaire qui mesure l'intervalle de temps est appliquée à l'entrée de l'oscillographe 262 B Ribet-Desjardins. Comme toutes les liaisons sont faites par condensateur, deux

diodes restorers montées en parallèle sur les résistances des plaques de déviation permettent de compenser la variation bien connue du courant moyen qui se traduit sur le tube par le déplacement de la position de repos du spot. Néanmoins la forme triangulaire de l'impulsion ne permet pas un fonctionnement correct des diodes restorers. C'est pourquoi nous avons réalisé un :

Transformateur de dents de scie d'amplitude variable en impulsion rectangulaire d'égale amplitude. — Son schéma est visible sur la figure 11. Le condensateur *C* est normalement tenu déchargé par le tube T_3 dont la tension grille est asservie à un univibrateur T_4. La cathode follower T_1 est normalement fermée, sa tension grille étant modulée par la tension triangulaire à transformer, délivrée par un dispositif analogue à celui de la figure 10. Au signal E (impulsion α) l'univibrateur passe dans son état métastable : une impulsion rectangulaire négative ferme T_3

Fig. 11.

cependant qu'une impulsion rectangulaire positive sur la grille de T_1 amène ce tube, toujours au cut-off, dans une zone de fonctionnement de bonne linéarité. Le condensateur *C* prend alors une tension pratiquement égale à l'amplitude de la dent de scie à l'instant de l'impulsion α si le potentiel de référence de *C* a été précédemment ajusté de façon à ne pas obtenir d'impulsion quand la tension en dent de scie est annulée. Cependant qu'un signal de T_4 convenablement retardé provoque l'effondrement de la dent de scie, nous recueillons sur la cathode de T_2 une impulsion rectangulaire d'amplitude égale à celle de la dent de scie au moment du changement d'état.

Une attention particulière doit être attachée à la réalisation de l'univibrateur T_4 qui doit être très stable en amplitude. C'est pourquoi T_4 est réalisé avec des pentodes pour profiter du coude de la caractéristique de ces tubes.

2. **Etude de la corrélation entre un intervalle d'une classe donnée et l'intervalle suivant.** — L'appareillage pour ce type d'enregistrement doit remplir entre autres les fonctions suivantes :

— sélectionner dans toute la distribution des intervalles de temps une classe d'intervalles déterminée *a priori*;

- enregistrer sur l'écran d'un tube cathodique (*voir* première partie) la distribution des intervalles suiveurs. Cela nécessite l'emploi d'un déclencheur électronique asservi.

Sélecteur d'intervalles de temps. — La figure 12 en donne le schéma de réalisation. Le discriminateur

Fig. 12.

de niveaux est un tube à faisceau laminaire de six canaux Philips type 58 N. Il présente la particularité d'avoir des électrodes de sortie à émission secondaire permettant un courant de sortie de 1 mA. Nous envoyons dans l'amplificateur les impulsions rectangulaires du dispositif précédent. Quand les plaques déviatrices ont pris les tensions correspondantes au plat de l'impulsion, l'univibrateur de Wehnelt commandé par l'intermédiaire d'une ligne à retard non visible sur le schéma provoque l'apparition du faisceau pendant 5 μs. Nous recueillons sur les électrodes de sortie une impulsion rectangulaire qui attaque un circuit de Schmidt permettant de fixer correctement la largeur du canal. Nous obtenons ainsi un signal E_2 caractéristique de la classe d'intervalles choisie utilisé pour la commande du déclencheur électronique.

Déclencheur électronique asservi. — Ce dispositif est conçu pour délivrer un signal rectangulaire d'enregistrement S d'une durée de 22 μs et d'une amplitude de 100 V, uniquement lorsqu'un signal E_{1+}

Fig. 13.

et un seul apparaît un intervalle de temps quelconque après qu'un signal E_{2+} ait donné l'ordre d'enregistrement.

Le signal S est fourni par un univibrateur commandé par le signal E_1 agissant sur sa grille, lorsque E_2, a donné l'ordre d'enregistrement. En l'absence du signal E_2, les signaux E_1 sont inefficaces sur l'univibrateur car ils sont dérivés vers la masse par un tube électronique ouvert et une capacité. Survienne un signal E_2, celui-ci provoque le changement d'état d'une bascule électronique qui commande la fermeture du tube de dérivation. L'univibrateur est alors sensible au signal E_1 qui suivra. Lors de son fonctionnement une impulsion sera appliquée à l'une des grilles de la bascule pour la ramener dans l'état d'attente où les signaux E_1 sont étouffés et où elle est sensible au signal E_2.

L'univibrateur est réalisé avec 2 EF 42. La bascule comporte un tube ECC 40. Le tube « étouffeur » est un EF 42 monté en triode (faible résistance interne exigée). La polarisation de grille est commandée par une chaîne potentiométrique de résistance élevée (pour éviter toute perturbation dans le fonctionnement de la bascule) entre le sol et une plaque de la bascule. Quand le triode correspondant est fermé, la grille du tube « étouffeur » est au potentiel de sa cathode et les signaux E_1 sont dérivés vers le sol. Si un signal E_2 provoque l'ouverture du triode, la grille du tube étouffeur est à une tension inférieure à la tension du cutt-off par rapport à sa cathode et le signal E_1 qui surviendra alors actionne l'univibrateur lequel délivre alors le signal S et, à travers un circuit de différenciation *RC* convenablement ajusté, une impulsion négative qui ramène la bascule à l'état primitif.

Je ne veux pas terminer ce travail sans remercier M. le Professeur Thibaud, Directeur de l'Institut de Physique nucléaire de Lyon, pour les conseils et les facilités qu'il n'a cessé de m'accorder.

Manuscrit reçu le 3 septembre 1953.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] THIBAUD J. — *J. Physique Rad.*, 1937, **8**, 94 S.
[2] BRENET J. et ARMAND. — *J. Physique Rad.*, 1938, **9**, 74.
[3] GUMBEL. — *J. Physique Rad.*, 1937, **8**, 321 et 446.
[4] THIBAUD J. — *Ann. Physique*, 1941, **15**, 225.
[5] CURIE M. — *J. Physique Rad.*, 1920, **1**, 12.
[6] KUTZNER. — *Z. Physik*, 1924, **21**, 281 et 1927, **44**, 655.
[7] POKROSKI. — *Z. Physik*, 1929, **58**, 706.
[8] CURTISS. — *Bur. Stand. J. Research*, 1930, **4**, 595 et 1932, **8**, 339.
[9] THIBAUD J., CARTAN L. et COMPARAT P. — Techniques actuelles en Physique nucléaire, Gauthier Villars, 1938.
[10] THIBAUD J. — *C. R. Acad. Sc.*, 1941, **212**, 860.
[11] THIBAUD J. et FERBER M. — *Rev. Sc.*, avril 1939, 232
[12] THIBAUD J. — *Ann. Univ. Lyon*, 1943, 3e série, A, p. 43.
[13] THIBAUD J. et CHÉRY R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **230**, 83.
[14] ELMORE et SANDS. — *Electronics*, p. 100.
[15] CLAFKIDÈS P. — *Chimie Photographique*, p. 118.
[16] CHANCE, HUGHES, etc. — Waveforms (Radiation Laboratory Series.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM. TOME 15, FÉVRIER 1954, PAGE 82.

SPECTRE HERTZIEN ET STRUCTURE DES SOLIDES.
III. RECHERCHES PRÉLIMINAIRES SUR LES COMPOSÉS NON STOECHIOMÉTRIQUES : OXYDES D'URANIUM (1)

Par Mme M. FREYMANN, Mlle S. LANGEVIN et Mme M. T. ROLLAND-BERNARD,
Faculté des Sciences de Rennes.

et MM. P. PERIO et R. KLEINBERGER,
Commissariat à l'Énergie atomique, Service de Chimie physique, Paris.

Sommaire. — Cette étude des propriétés diélectriques des oxydes d'uranium a eu un double but : D'une part compléter, par une méthode distincte, les recherches en cours au C.E.A. sur ces composés [15], [22]; d'autre part souligner l'intérêt de cette nouvelle méthode d'examen de la structure des composés non stœchiométriques.

Les quatre exemples typiques d'oxydes d'uranium, UO_2, $UO_{2,25}$, U_3O_8, UO_3, montrent des propriétés diélectriques (absorption et constante diélectrique en fonction de la température et de la fréquence) très différentes. Ce travail précise que, d'une façon générale, *les courbes absorption-température des oxydes d'uranium présentent deux maxima distincts* : L'un, vers les basses températures, constitue une absorption Debye. Nous pensons que les dipôles correspondants proviennent des défauts de réseau; c'est le phénomène le plus intéressant du point de vue des applications possibles. L'autre, vers la température ordinaire, ne paraît pas être une absorption Debye et il présente des phénomènes d'hystérésis.

Nous avons étudié, pour une vingtaine d'échantillons, l'influence de la fréquence utilisée (200 Hz à 1 MHz), de la teneur en oxygène (et, par suite, de la structure cristalline), sur les courbes $\varepsilon'(T)$ et surtout $\varepsilon''(T)$. Les résultats obtenus sont résumés à l'aide de la représentation $\mathrm{Log}\,\nu_c\left(\frac{1}{T}\right)$ [10], [11]. On en déduit les variations de l'énergie d'activation U des défauts de réseau en fonction de la teneur en oxygène; cette énergie *d'activation est minimum pour une composition voisine de* $UO_{2,25}$. C'est d'ailleurs *également pour cette composition que l'absorption en ondes centimétriques est maximum* ($\lambda = 3,14$ cm); des recherches dans ce domaine sont encore à développer.

Il convient de placer le problème abordé ici dans le cadre général de l'étude des solides :

1° Étude de la structure « *géométrique* » des solides : rayons X; spectres infrarouges et Raman, etc.

2° Étude des phénomènes « *coopératifs* » dans les solides, correspondant à des orientations communes des dipoles : Ferro et antiferroélectricité;

3° Étude des *défauts* dans la structure des solides : conductibilité en courant continu, diffusion et enfin absorption hertzienne, problème étudié plus particulièrement dans le présent Mémoire et les précédents ([1]).

Introduction. — Les mesures de constante diélectrique et d'absorption hertzienne des oxydes métalliques se sont particulièrement développées depuis quelques années. Ceci tient d'une part à l'importance pratique des nouvelles céramiques à constante diélectrique élevée (titanate de baryum par exemple), d'autre part à l'intérêt théorique de la ferroélectricité (et de l'antiferroélectricité). Un certain nombre d'oxydes et de leurs mélanges ont été étudiés ainsi, dans un domaine de fréquences et de températures malheureusement trop limité. Cependant, à notre connaissance, il ne semble pas que les oxydes d'uranium aient fait l'objet de recherches systématiques antérieures et nous donnons ici les premiers résultats de leur étude; soulignons que ce sont ces recherches préliminaires sur les oxydes qui ont conduit depuis [10] à mettre en évidence les bandes de Debye de nombreux semi-conducteurs et *les relier aux défauts de réseau.*

Il nous paraît utile de placer dès maintenant le problème que nous avons étudié dans le cadre général de l'examen de la structure des solides :

1° Les techniques d'absorption infrarouge, de diffusion Raman, de diffraction des rayons X, etc. indiquent la structure « *géométrique* » du solide.

2° L'étude de la ferroélectricité (et de l'antiferroélectricité), du magnétisme et de l'antiferromagnétisme, permettent l'examen des phénomènes « *coopératifs* » [2], [17], [18], [28].

3° Les mesures de conductibilité en courant continu, la diffusion de traceurs radioactifs, etc. et surtout l'absorption hertzienne — dont nous soulignons justement ici l'importance — permettent l'étude des « *défauts de réseau* » [4], [5], [10], [11], [18].

Nous avons été conduits à ces recherches, en ce qui concerne les propriétés diélectriques, à la suite d'une étude de M. J. Day sur la susceptibilité magnétique et sur d'autres propriétés des composés de l'uranium [7]. M. et R. Freymann avaient examiné, en 1949, les propriétés diélectriques (entre 1 et 16 kHz) de deux oxydes d'uranium [8], [9], [11]; ces composés, d'aspect gris, correspondaient (titrage effectué au C. E. A. en 1951) aux formules $UO_{2,21}$ et $UO_{2,51}$ (échantillons nos 8 et 14 *bis* de la liste, p. 83 et 84). Ils observèrent une anomalie de l'absorption vers 135 et 120° K environ, pour $\nu = 16$ kHz. Ces résultats conduisirent à examiner (en 1951), des oxydes préparés au C.E.A., de formules voisines de UO_2, U_3O_8 et UO_3 (nos 3, 19, 22); les résultats antérieurs furent ainsi étendus à U_3O_8 [9], [11].

Enfin faisant suite à l'étude systématique des diagrammes température-concentration du système uranium-oxygène entreprise au C.E.A. [15], [22], nous avons abordé en 1951, l'étude diélectrique de ce système pour les divers oxydes dont nous donnons la liste ci-après :

Oxydes d'uranium étudiés.

(C.E.A. : Commissariat à l'Énergie Atomique.)

Oxydes cubiques (domaine de UO_2).

1. $UO_{2,00}$.... Fritté en atmosphère d'hydrogène (C. E. A., 1951) puis broyé; $a = 5,458$ kX; très bien cristallisé (> 1 μ)
2. $UO_{2,00}$.... Réduit par U métal vers 600°, $a = 5,458$ kX. Bien cristallisé (environ 1500 Å)
3. $UO_{2,05}$.... Préparation C.E.A., 1950
4. $UO_{2,07}$.... Cubique α [15] par oxydation de $UO_{2,00}$ à l'air, à 120° et recuit; a voisin de 5,450 kX. Médiocrement cristallisé (environ 500 Å)
5. $UO_{2,075}$... Produit industriel ayant évolué à température ambiante; $a = 5,456$ kX. Moyennement cristallisé (environ 1000 Å)
6. $UO_{2,13}$....
7. $UO_{2,17}$.... } Produits non homogénéisés comportant un cœur $UO_{2,00}$ non oxydé entouré d'une couche suroxydée et fortement perturbée (quadratique ∘) [22]
8. $UO_{2,21}$.... « Poulenc » de préparation très ancienne (25 à 30 ans). Titré en novembre 1951 au C.E.A. (cubique)

([1]) Pour I voir *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 203. La partie II, paraîtra comme Mise au point au *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, fascicule du mois de mars.

9.	$UO_{2,25}$....	Cubique; recuit à 500° C. $a = 5,426$ kX; moins de 1 pour 100 de phase étrangère (C.E.A., décembre 1951)
10.	$UO_{2,25}$....	Oxydé à 120°, non recuit (*cf.* [15]). Analogue à [15] (tableau II, n° 6)
11.	$UO_{2,25}$....	Recuit à plus de 600° C; bien cristallisé, similaire à n° 9
12.	$UO_{2,29}$....	Oxydé à 120°; non recuit (*cf.* [15], III)
		Oxyde quadratique γ (*fig.* 9).
13.	$UO_{2,37}$....	C.E.A., décembre 1951. Recuit à 200° C ([15], tableau II; n° 14). Paramètres analogues à n° 14 ci-dessous. Probablement mélangé à un peu d'oxyde de titre inférieur
14.	$UO_{2,40}$....	$a = b = 5,436$; $c = 5,389$
		Oxyde cubique ($UO_{2,25}$) + *Orthorhombique.*
14 *bis.*	$UO_{2,51}$....	Préparé par J. Day (1949); titré au C.E.A. en novembre 1951; contient 90 pour 100 ortho + 10 pour 100 cubique ou quadratique
15.	$UO_{2,51}$....	C.E.A., 1951 : $UO_{2,25}$ cubique + $UO_{2,54}$ ortho. La température de préparation fait attribuer le titre $UO_{2,54}$ à l'orthorhombique
16.	$UO_{2,65}$....	C.E.A., 1951. A partir d'uranate d'uranyle industriel
		Oxydes orthorhombiques.
		($a = 6,70$; $b = 3,97 \pm 0,01$; $c = 4,14$).
17.	$UO_{2,60}$....	C.E.A., 1951. Décomposition de UO_3 en atmosphère d'azote, aux environs de 500° C
18.	$UO_{2,65}$....	C. E. A., 1951. Par recuit d'un produit industriel à 500° C
(19).	($UO_{2,66}$)...	Produit industriel C.E.A., 1950; cubique + quadratique ou orthorhombique
20.	$UO_{2,67}$....	C.E.A., 1951. Par action de l'oxygène sur l'uranium métallique
		Oxyde hexagonal (?).
21.	$UO_{2,83}$.(*).	C.E.A., 1951. Décomposition thermique de UO_3 amorphe à l'air. Légèrement hygroscopique. Probablement mélange de U_6O_{17} ($a = b = 3,85$ kX; $c = 4,16$ kX) + UO_3 amorphe
		Oxyde amorphe.
22.	UO_3......	Produit industriel C.E.A., 1950

(*) Ou peut-être $UO_{2,55}$ à $UO_{2,88}$.

Techniques expérimentales hertziennes. — Nos recherches ont porté plus spécialement sur les ondes kilométriques (de $\nu = 0,2$ kHz, soit $\lambda = 1500$ km à $\nu = 1$ MHz, soit $\lambda = 0,3$ km). Mais nous avons également effectué des mesures en ondes centimétriques ($\nu = 9\,560$ MHz, soit $\lambda = 3,138$ cm). Nous ne reviendrons pas sur les techniques expérimentales utilisées (mesures de ε' et ε'' au pont de Sauty ou par la méthode de Benoit-Roberts-Von Hippel) : elles ont été décrites précédemment [10].

1. **Les quatre exemples typiques d'oxydes (UO_2, $UO_{2,25}$ U_3O_8, UO_3) présentent des absorptions très différentes en ondes kilométriques.** — La figure 1 montre, sur quatre exemples typiques,

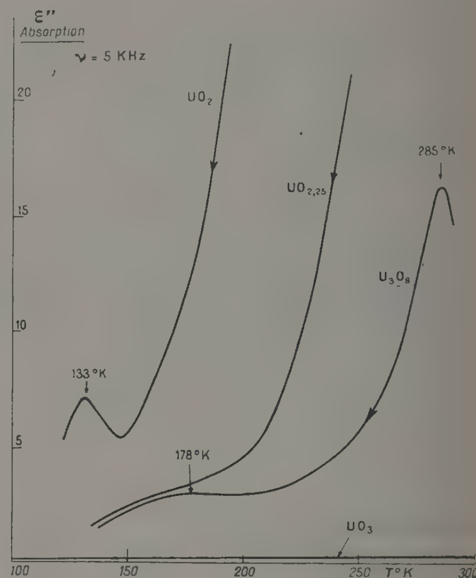


Fig. 1.

le rôle capital joué par la teneur en oxygène : L'oxyde UO_3 (échantillon n° 22) n'absorbe pas sensiblement de 150 à 300° K; par contre, les oxydes de composition voisine de U_3O_8 (n° 19) et de UO_2 (n° 1) présentent *deux régions* d'absorption (les températures absolues sont portées en abscisses) : Vers la température ordinaire d'une part; vers 178 ou 133° K respectivement d'autre part (pour la fréquence 5 kHz). On se reportera également à ce sujet aux figures 9 et 10; le cas particulier de $UO_{2,25}$ sera examiné plus loin.

On notera par ailleurs, la forte absorption de l'oxyde UO_2 vers la température ordinaire. Elle est liée à la conductibilité (vraisemblablement électronique); ce phénomène est bien connu en courant continu (*voir* par exemple Prigent [23]).

Nous reviendrons au paragraphe 3 sur l'influence de la teneur en oxygène.

2. **Les deux régions d'absorption des oxydes**

d'uranium. — La figure I montrait nettement, pour U_3O_8, l'existence de deux régions d'absorption, vers 178 et 285° K environ. Nous voulons souligner maintenant que *ces deux régions d'absorption d'un même oxyde correspondent à deux phénomènes très différents.*

1° *La région d'absorption vers les basses températures correspond à l'absorption Debye; c'est le phénomène le plus intéressant* (²) :

A. *Exemple* : U_3O_8. — On sait que l'absorption Debye se caractérise comme suit :

a. La courbe reliant la constante diélectrique ε' à la température montre une inflexion pour la température correspondant approximativement au maximum de l'absorption ε''.

b. Le maximum de la courbe $\varepsilon'' = f(T)$ se déplace vers les températures élevées quand la fréquence s'élève; la valeur absolue de ce maximum varie peu avec la fréquence.

c. De même le maximum de la courbe $\varepsilon'' = f(\nu)$ se déplace vers les fréquences élevées quand la température s'élève.

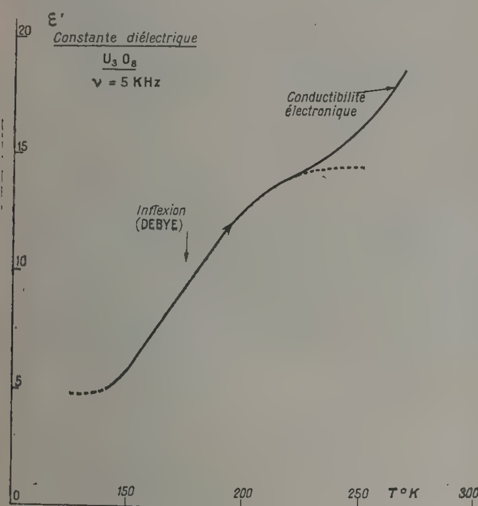


Fig. 2.

Ces trois propriétés caractéristiques se retrouvent, pour U_3O_8 (n° 19), sur les figures 2, 3 et 4 :

a. Sur la figure 2, la courbe $\varepsilon' = f(T)$ présente une inflexion vers 175° K environ, c'est-à-dire sensiblement la température du maximum de ε'' pour la fréquence 5 kHz utilisée.

b. Le phénomène est évidemment plus net sur la courbe $\varepsilon'' = f(T)$ de la figure 3 car un maximum d'absorption (effet du premier ordre), est mieux marqué qu'une inflexion (effet du second ordre) [12]. On note sur la figure 3 l'influence de la fréquence : de 1 à 16 kHz, la température du maximum se déplace vers les températures plus élevées. En outre, la valeur absolue du maximum reste sensiblement

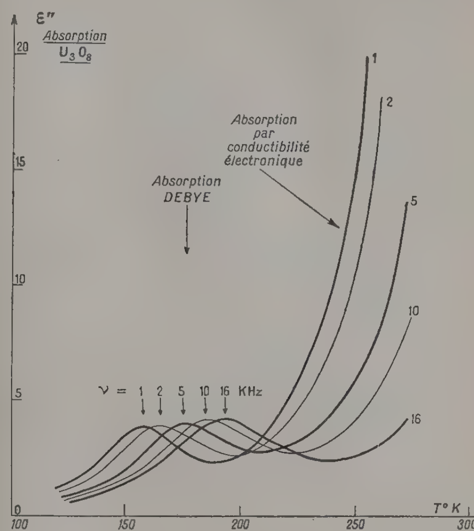


Fig. 3.

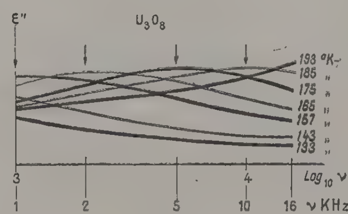


Fig. 4.

constante (en réalité, on observe une très légère augmentation, à peine supérieure aux erreurs d'expérience) (³).

c. La figure 4, déduite de la figure 3, confirme que la courbe $\varepsilon'' = f(\nu)$ se déplace vers les fréquences élevées quand T augmente.

Ces divers résultats confirmaient que, pour U_3O_8, les données peuvent s'interpréter par une absorption du type Debye. Mais il restait à préciser quelle est *l'origine des dipoles* qui s'orientent, problème fondamental sur lequel nous reviendrons plus loin.

(²) Nous avons vérifié (préparation d'UO_2 par combustion directe de métal et d'oxygène anhydres, dessication des oxydes, variation de la fréquence hertzienne) que cette absorption Debye ne pouvait être due à l'eau.

(³) L'augmentation considérable de l'absorption vers la température ordinaire correspond à un autre effet, très général pour tous les diélectriques examinés en basse fréquence : absorption par conductibilité électronique (ou ionique ?), par porteurs libres.

B. *Exemple* : UO_2. — Les figures 5 (échantillon n° 8) et 6 (échantillon n° 1) généralisent, pour $UO_{2.21}$ et pour UO_2, les résultats déjà obtenus pour U_3O_8 (les expériences ont été étendues ici vers les fréquences plus élevées, 100 kHz).

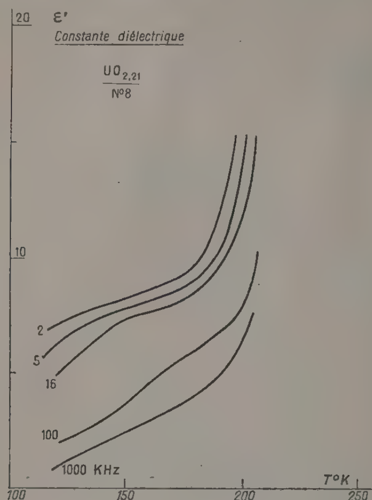


Fig. 5.

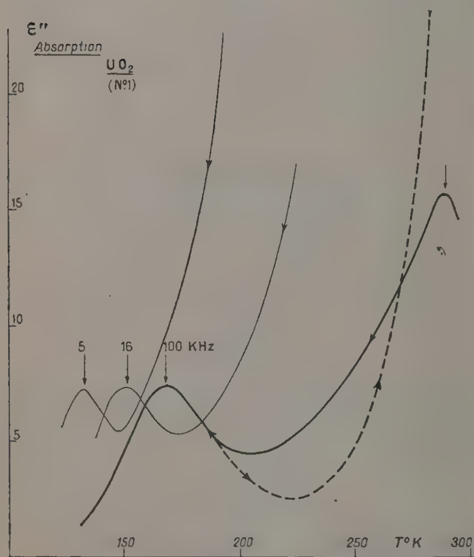


Fig. 6.

Toutefois, un fait nouveau apparaît sur la figure 6 : Un maximum vers la température ordinaire que nous allons étudier maintenant.

2° *La région d'absorption, vers la température ordinaire, ne semble pas être due à l'absorption Debye. Existence d'un phénomène d'hystérésis.* — Superposé à une forte absorption par porteurs libres, on note un *maximum d'absorption de* UO_2 (échantillon n° 1), *vers la température ordinaire; il s'observe quand on refroidit la substance étudiée* (courbe en traits pleins de la figure 6); *mais il n'apparaît pas au réchauffement* (courbe en traits pointillés).

Nous avons vérifié l'existence de ce phénomène

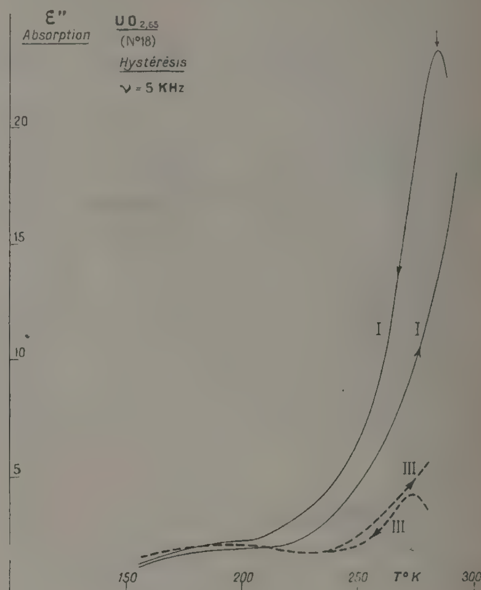


Fig. 7.

pour diverses fréquences (5 à 100 kHz) et pour divers oxydes d'uranium.

La figure 7 en fournit un exemple typique : l'absorption de $UO_{2.65}$ (n° 18) soumis à trois cycles thermiques successifs (refroidissement, puis réchauffement alternés); pour plus de clarté, seuls les cycles I

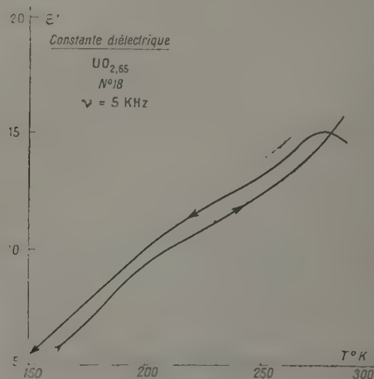


Fig. 8.

et III ont été portés sur la figure 7. On voit que chaque fois le maximum apparaît au refroidissement et non au réchauffement; en outre, fait important, *l'absorption générale diminue fortement d'un cycle*

au suivant. (On notera qu'un choc mécanique peut accroître à nouveau l'absorption.)

Mais la comparaison des figures 7 et 8 montre en outre une autre particularité du phénomène pour le même échantillon n° 18 de $UO_{2,65}$: *au maximum de l'absorption* ε″ (*vers* 290° K) *correspond, au refroidissement, un* MAXIMUM DE LA CONSTANTE DIÉLECTRIQUE ε′. Ceci différencie nettement cet effet de l'effet Debye pour lequel la constante diélectrique présente une inflexion et non pas un maximum.

3. L'influence de la teneur en oxygène et l'énergie d'activation *U.* — 1° *L'anomalie pour* $UO_{2.25}$. — Il aurait pu sembler, *a priori*, que

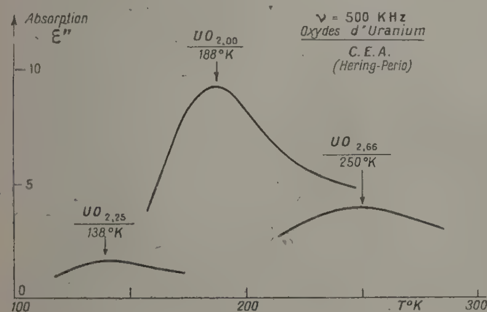


Fig. 9.

la température correspondant au maximum d'absorption Debye devait varier de façon continue avec la teneur en oxygène. La figure 9 (fréquence de mesure 500 kHz) montre qu'il n'en est rien : Alors que pour $UO_{2.00}$ le maximum est à 188° K et pour $UO_{2.66}$ à 250° K, *le maximum correspondant pour* $UO_{2.25}$ *n'est pas compris entre ces deux valeurs,* mais est situé à 138° K (4).

2° *Emploi de la représentation* $\mathrm{Log}\,\nu_c\left(\frac{1}{T}\right)$. — Pour

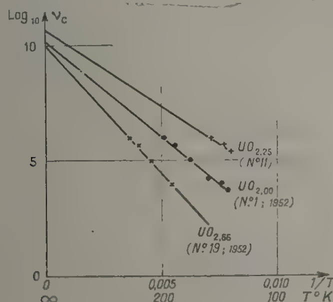


Fig. 10.

(4) On se gardera de tirer des conclusions des valeurs différentes des maxima d'intensité de la figure 9. Elle tient peut-être à la différence de densité des poudres examinées : Pour UO_2 fritté la densité est beaucoup plus grande que pour $UO_{2,66}$, poudre fine.

étendre l'observation précédente aux diverses régions du spectre hertzien, il était commode d'utiliser la représentation $\mathrm{Log}_{10}\,\nu_c\left(\frac{1}{T}\right)$ dont il a été question dans des publications antérieures [10], [11]. C'est ce que donne la figure 10, pour quelques exemples

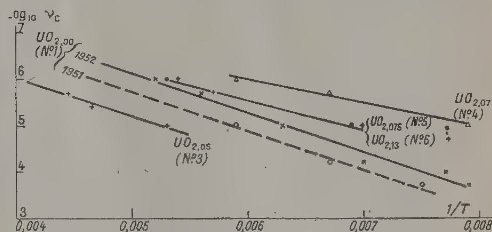


Fig. 11.

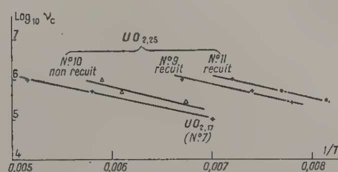


Fig. 12.

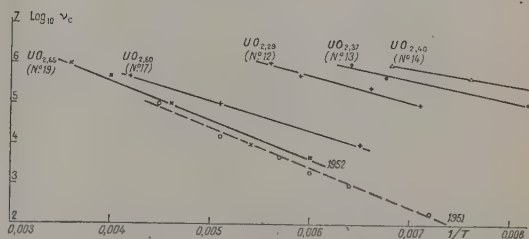


Fig. 13.

typiques : La droite représentative de $UO_{2,25}$ est située au-dessus de celles caractéristiques de $UO_{2.00}$ et $UO_{2.66}$.

D'autre part, les figures 11, 12, 13 rassemblent, par cette représentation, les résultats relatifs aux divers oxydes étudiés, de composition comprise entre $UO_{2,00}$ et $UO_{2,66}$. Le tableau donne les valeurs numériques correspondantes. On remarquera notamment l'évolution appréciable du produit n° 1 ($UO_{2.00}$) mesuré en 1951 puis en 1952.

3° *L'énergie d'activation U, le terme A et l'intensité* ε″max. — Si l'on admet la validité de la théorie de Debye [12], [13], les courbes $\mathrm{Log}\,\nu_c\left(\frac{1}{T}\right)$ doivent être des droites. C'est ce que confirment les figures 10 à 13 et notamment, sur la figure 10, les courbes relatives à $UO_{2.00}$ et $UO_{2,66}$, étudiés avec un soin particulier. Cette linéarité justifie l'emploi de la

Log ν_c.	ν_c (kHz).		1. $UO_{2,00}$ (1952).	1. $UO_{2,00}$ (1951).	2. $UO_{2,00}$.	3. $UO_{2,05}$.	4. $UO_{2,07}$.	5. $UO_{2,075}$.	6. $UO_{2,13}$.	7. $UO_{2,17}$.	9. $UO_{2,25}$.
6	1000	T(°K)..	192	–	–	–	167	190	187	194	149
		$\frac{1}{T}$.....	0,0052	–	–	–	0,0059	0,0053	0,0054	0,0051	0,0067
5,7	500	T(°K)..	177	–	–	225	149	178	174	173	135
		$\frac{1}{T}$.....	0,0056	–	–	0,0044	0,0067	0,0056	0,0057	0,0058	0,0074
5,4	250	T(°K)..	–	–	–	215	–	–	–	–	128
		$\frac{1}{T}$.....	–	–	–	0,0046	–	–	–	–	0,0078
5	100	T(°K)..	158	170	185	190	127	145	143	143	–
		$\frac{1}{T}$.....	0,0063	0,0059	0,0054	0,0053	0,0079	0,0069	0,0070	0,0070	–
4,2	16	T(°K)..	142	150	–	–	–	–	–	–	–
		$\frac{1}{T}$.....	0,0070	0,0067	–	–	–	–	–	–	–
4	10	T(°K)..	130	–	135	–	–	–	–	–	–
		$\frac{1}{T}$.....	0,0077	–	0,0074	–	–	–	–	–	–
3,7	5	T(°K)..	126	133	–	–	–	–	–	–	–
		$\frac{1}{T}$.....	0,0079	0,0075	–	–	–	–	–	–	–
3,3	2	T(°K)..	–	–	–	–	–	–	–	–	–
		$\frac{1}{T}$.....	–	–	–	–	–	–	–	–	–
3	1	T(°K)..	–	–	–	–	–	–	–	–	–
		$\frac{1}{T}$.....	–	–	–	–	–	–	–	–	–
2,3	0,2	T(°K)..	–	–	–	–	–	–	–	–	–
		$\frac{1}{T}$.....	–	–	–	–	–	–	–	–	–

formule classique $\nu_c = A \exp - \frac{U}{RT}$ ([5]). On déduit de celle-ci :

1° *L'énergie d'activation U.*

2° Le *terme A* lié, comme il a été admis dans des publications antérieures [10] au temps de relaxation τ ($\tau = \frac{1}{\nu_0}$, Debye ionique; $\tau = \frac{m}{e}\mu$, Debye électronique).

Rappelons également l'intérêt d'une troisième grandeur, l'intensité ε''_{max} du maximum de l'absorption (lié au nombre de défauts de réseau) [5], [10].

Le calcul de U a été fait pour les divers oxydes étudiés et la figure 14 permet d'en déduire deux conséquences :

A. Pour les composés de la phase cubique, l'énergie d'activation, voisine de 4,5 kcal pour $UO_{2,00}$, décroît pour des teneurs supérieures en oxygène : Il semblerait qu'un *minimum se manifeste pour une composition voisine de* $UO_{2,25}$ (composé U_4O_9 sur lequel

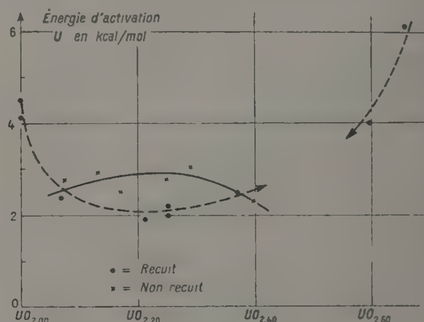


Fig. 14.

nous reviendrons plus loin). L'énergie d'activation croît à nouveau pour les composés de la phase orthorhombique jusqu'à $UO_{2,60}$ pour lequel elle est voisine de 6 kcal.

([5]) $R = kN$, constante des gaz parfaits, étant pris égal à 1,985, nous donnons plus loin les valeurs de U en kilocalories par molécule. Rappelons que 1 eV correspond à 23 053 kcal/mol.

Log ν_c.	ν_c (*k*Hz).		10. $UO_{2,25}$	11. $UO_{2,25}$	12. $UO_{2,29}$.	13. $UO_{2,37}$.	14. $UO_{2,40}$.	17. $UO_{2,60}$.	19. $UO_{2,65}$. (1952).	19. $UO_{2,65}$. (1951).
6	1000	T(°K)..	170	139	178	157	147	–	274	–
		$\frac{1}{T}$.....	0,0059	0,0072	0,0056	0,0064	0,0068	–	0,0036	–
5,7	500	T(°K)..	163	130	170	148	132	240	250	–
		$\frac{1}{T}$.....	0,0061	0,0077	0,0059	0,0067	0,0076	0,0042	0,0040	–
5,4	250	T(°K)..	148	123	150	–	–	–	–	–
		$\frac{1}{T}$.....	0,0068	0,0081	0,0066	–	–	–	–	–
5	100	T(°K)..	–	–	140	122	112	195	218	221
		$\frac{1}{T}$.....	–	–	0,0071	0,0082	0,0089	0,0051	0,0046	0,0045
4,2	16	T(°K)..	–	–	–	–	–	–	–	–
		$\frac{1}{T}$.....	–	–				–	–	–
4	10	T(°K)..	–	–	–	–	–	155	185	–
		$\frac{1}{T}$.....	–	–	–	–	–	0,0065	0,0054	–
3,7	5	T(°K)..	–	–	–	–	–	–	168	176
		$\frac{1}{T}$.....	–	–	–	–	–	–	0,0060	0,057
3,3	2	T(°K)..	–	–	–	–	–	–	–	166
		$\frac{1}{T}$.....	–	–	–	–	–	–	–	0,0060
3	1	T(°K)..	–	–	–	–	–	–	–	157
		$\frac{1}{T}$.....	–	–	–	–	–	–	–	0,0064
2,3	0,2	T(°K)..	–	–	–	–	–	–	–	138
		$\frac{1}{T}$.....	–	–	–	–	–	–	–	0,0072

B. Il convient de souligner le *rôle du recuit sur l'énergie d'activation* : Pour la même composition $UO_{2,25}$, trois échantillons ont été examinés (échantillons 9, 10, 11). Celui qui n'était pas *recuit présentait l'énergie d'activation la plus élevée.* Cette remarque semble générale, comme l'indique la figure 14 (sur laquelle les composés recuits ont été figurés par . et les non-recuits par x).

Outre son intérêt pratique, cette observation sur l'effet du recuit paraît en accord avec la conception des défauts de réseau dont il sera question plus loin.

4. **Mesures dans le domaine des ondes centimétriques.** — Tout ce qui précède se rapportait uniquement à des recherches en ondes kilométriques ou hectométriques. Nous avons également effectué des mesures de ε' et ε'' pour $\nu = 9\,560$ MHz, ($\lambda = 3,14$ cm) de 150 à 350° K pour les produits dont la composition est indiquée sur la figure 15 et, à 293° K seulement pour les composés indiqués sur les figures 16 et 17.

La figure 15 ne montre pas de maximum de ε'' en fonction de la température mais elle précise que $UO_{2,25}$ et $UO_{2,21}$ (6) sont beaucoup plus absorbants que les autres oxydes. Ce rôle particulier de la composition voisine de U_4O_9 se précise sur les

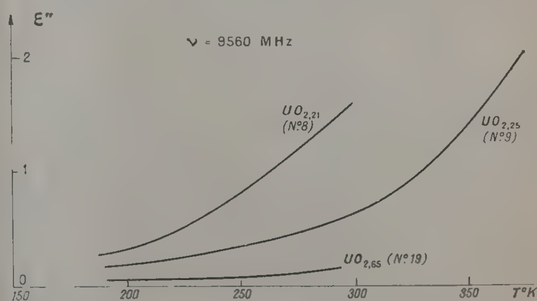


Fig. 15.

(6) L'échantillon n° 8 était un oxyde préparé depuis une trentaine d'années, pour lequel le dosage semble indiquer la composition $UO_{2,21}$, mais que nous serions disposés à considérer comme un composé U_4O_9 typique.

figures 16 et 17 donnant l'absorption ε'' et la constante diélectrique ε' en fonction de la teneur en oxygène.

Ce phénomène est-il lié à l'absorption Debye ou à l'absorption par porteurs libres ? Bien que nous penchions en faveur de la première hypothèse, *de nouvelles expériences sont nécessaires* pour répondre à cette question. C'est ainsi que l'absence de

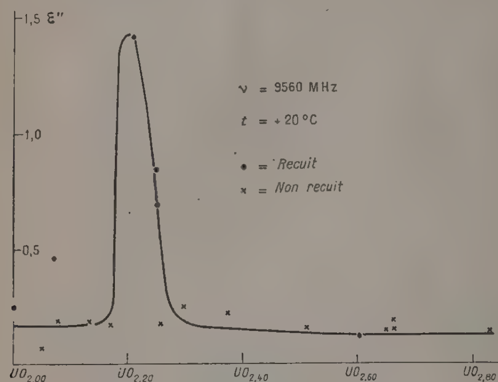


Fig. 16.

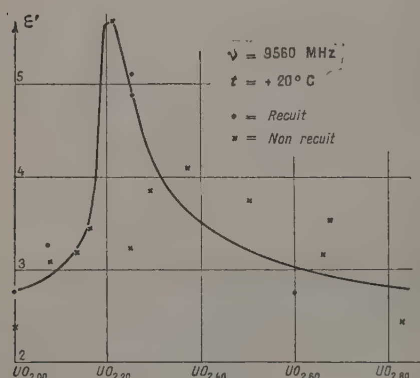


Fig. 17.

données expérimentales en ondes décamétriques et métriques ne nous permet pas actuellement de juger de la validité de l'extrapolation de la courbe $\text{Log}\, \nu_c \left(\frac{1}{T}\right)$ (*fig.* 10) en ondes centimétriques; et, cependant, une telle interpolation permettrait peut-être de rendre compte de l'absorption très élevées des ondes centimétriques pour les oxydes de composition voisine de $UO_{2,25}$. Comme le montrent les figures 10 à 14, ces oxydes correspondent aux droites les plus élevées de la représentation $\text{Log}\, \nu_c \left(\frac{1}{T}\right)$, donc à celles qui, pour les ondes centimétriques, se rapprochent le plus de la température ordinaire.

5. **Remarques sur l'interprétation des données expérimentales précédentes.** — 1° *L'absorption du type Debye et son origine : Défauts de réseau.* — Le premier type d'absorption que nous avons décrit répond aux caractéristiques de l'absorption par orientation dipolaire de Debye. Mais *elle a apporté un fait nouveau dans ce domaine, en ce qui concerne l'idée de dipôle* : Toutes les théories (Bauer, Debye, Frohlich, Kirkwood, Onsager), avaient *supposé implicitement jusqu'ici, que l'orientation dipolaire était liée à l'orientation des molécules ou groupements d'atomes* (exemple : cas de l'eau solide). Or ce ne peut être le cas des oxydes d'uranium pour lesquels il n'y a, dans le réseau cristallin, ni molécule ni groupement d'atomes.

Aussi, *sans rejeter l'idée d'orientation dipolaire de Debye, il a fallu réviser la notion de dipole* : Ainsi que l'avait supposé Breckenridge [4], [5] pour les cristaux ioniques type NaCl, nous admettrons ici que *les dipôles proviennent de l'existence de défauts dans le réseau cristallin.* Ce problème des défauts de réseau avait été surtout abordé, jusqu'ici, par des mesures de conductivité en courant continu [18], [21], [25], [26], [27]. *La méthode hertzienne a apporté un nouveau procédé d'investigation de ce problème* (7).

Ceci posé, deux problèmes sont à distinguer :

A. L'origine des défauts;

B. La nature des particules qui se déplacent de lacune en lacune.

A. Les défauts proviennent soit de la présence d'atomes ou d'ions étrangers (imperfections « chimiques »), soit de l'absence d'atomes ou d'ions du réseau cristallin (imperfections « physiques »). Or, dans le cas des oxydes d'uranium, l'absence d'ions se comprend aisément sur la base des structures type fluorine pour UO_2 et dérivée pour U_4O_9.

Pour UO_2 on aurait en effet :

U. { 000
0 1/2 1/2; 1/2 0 1/2; 1/2 1/2 0

O. { 1/4 1/4 1/4; 1/4 3/4 1/4; 3/4 1/4 1/4; 3/4 3/4 1/4
1/4 1/4 3/4; 1/4 3/4 3/4; 3/4 1/4 3/4; 3/4 3/4 3/4

et pour $UO_{2.25} = U_4O_9$:

U. { 000
0 1/2 1/2; 1/2 0 1/2; 1/2 1/2 0

O. { O I. { 1/4 1/4 1/4; 1/4 3/4 1/4: 3/4 1/4 1/4; 3/4 3/4 1/4
1/4 1/4 3/4; 1/4 3/4 3/4; 3/4 1/4 1/4; 3/4 3/4 3/4
O II. : 1/2 1/2 1/2

(7) Toutefois, l'étude des oxydes d'uranium — et de quelques autres — ne pourra être reprise avec fruit que lorsque celle de ZnO, relativement moins complexe, aura contribué à débrouiller la question [10].

De la sorte, l'atome d'oxygène O II occupant le centre du cube pourrait jouer un rôle primordial par sa présence ou son absence : Ceci rendrait compte du rôle particulier joué par l'oxyde $UO_{2,25}$ tant dans les diagrammes température-concentration [15], [2], que dans les résultats exposés dans le présent travail ([8]).

B. Il nous faut examiner maintenant la nature des particules qui se déplacent de lacune en lacune (et qui constituent l'analogue de l'orientation des molécules ou groupements d'atomes de l'ancienne conception) :

On peut envisager *soit le déplacement d'ions, soit le déplacement d'électrons ou de trous.* On peut admettre, avec Breckenridge [4], [5], que dans le premier cas le temps de relaxation est $\tau_0 = \frac{1}{\nu_0}$, ν_0 étant la fréquence de vibration du réseau cristallin. Dans le cas des électrons et trous, M. et R. Freymann [10] ont proposé d'admettre que $\tau = \frac{m}{e}\mu$, (μ étant la mobilité de la particule).

2° *L'absorption qui n'est pas du type Debye.* — L'absorption du second type que nous avons observée vers la température ordinaire correspond à *un maximum lié aux porteurs libres.* On pourrait rapprocher ce fait des phénomènes de ferroélectricité; mais nous croyons devoir souligner l'analogie entre ces observations et celles de Meinnel et Daniel [6], relatives à TiO_2 et divers composés renfermant des traces d'eau ([9]) : *La présence de traces d'eau peut amener, vers la température ordinaire, des maxima concomittants de ε′ et ε″.* De nouvelles recherches sont à faire à ce sujet pour les oxydes d'uranium (notamment l'étude de l'effet d'un champ continu superposé au champ alternatif).

Manuscrit reçu le 12 octobre 1953.

([8]) UO_3 ayant le maximum d'oxygène ne présente pas de lacune, donc pas d'absorption Debye, ce qui est conforme à l'expérience.

([9]) Si nous avons évité toute trace d'eau lors de la préparation des oxydes, nous n'avions pas pris, jusqu'ici, lors des mesures hertziennes, les précautions exceptionnelles de dessication qu'ont pris, depuis, Daniel et Meinnel [6].

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Bauer E. — *Cahiers de Physique*, 1944, **20**, 1; 1944, **21**, 37; 1945, **27**, 33.

[2] Blattner H., Kanzig W. et Merz W. — *Helv. Phys. Acta*, 1949, **22**, 35.

[3] Bottcher C. J. F. — Theory of electric polarisation (1 vol., Elsevier, 1952).

[4] Breckenridge R. G. — *J. Chem. Phys.*, 1948, **16**, 959 et 1950, **18**, 913.

[5] Breckenridge R. G. — Imperfections in nearly perfect crystals (Wiley, New-York, 1952, p. 219).

[6] Daniel E. — *Diplôme d'études supérieures*, Rennes, 1953 (tirage limité).

[7] Day J. — *Bull. Soc. Sc. Bretagne*, 1949, **24**, 13. *Diplôme d'études supérieures*, Rennes, 1947 (tirage limité).

[8] Day J., Freymann Mme M. et Freymann R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **229**, 1013.

[9] Freymann Mme M. et Freymann R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **230**, 2094.

[10] Freymann Mme M. et Freymann R. — *J. Chem. Phys.*, 1952, **20**, 1970 ; *J. Rad. Physique*, 1952, **13**, 589 et *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **275**, 1125. *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 203; *C. R. Acad. Sc.*, ;1953, **236**, 1256.

[11] Freymann Mme M., Rolland Mlle M. T. et Freymann R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 2312.

[12] Freymann R. — Les ondes hertziennes et la structure moléculaire (1 vol., Hermann, Paris, 1936).

[13] Frohlich H. — Theory of dielectrics (1 vol., Oxford University Press, 1949).

[14] Guillien R. — *Cahiers de Physique*, 1942, **11**, 17; 1944, **23**, 43. *Ann. Physique*, 1942, **17**, 238 et 334.

[15] Hering H. et Perio P. — *Bull. Soc. Chim.*, 1952, **19**, 351.

[16] Henisch H. K. — Semi conducting materials (1 vol. Butterworths Publ., 1951).

[17] Hippel (von). — *Rev. Mod. Phys.*, 1950, **22**, 221.

[18] Kittel C. — Introduction to solid state Physics (1 vol., Wiley, New-York, 1953).

[19] Langevin Mlle S. — *Diplôme d'études supérieures*, Rennes, 1952 (tirage limité).

[20] Meinnel J. — *Diplôme d'études supérieures*, Rennes, 1949 (tirage limité).

[21] Mott N. F. et Gurney R. W. — Electronic Processes (Oxford University Press, 1940).

[22] Perio P. — *Bull. Soc. Chim.*, 1953, 256.

23] Prigent J. — *J. Physique Rad.*, 1949, **8**, 58.

[24] Rolland Mlle M. T. — *Diplôme d'études supérieures*, Rennes, 1951 (tirage limité).

[25] Seitz F. — Théorie moderne des solides (1 vol., Masson, Paris, 1949).

[26] Shockley W. — Electrons and holes (Van Nostrand, 1951).

[27] Smoluchowsky. — Phase transformations in solids (Wiley, New-York, 1952).

[28] Snoek J. L. — *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 228.

SPECTRES DE FLUORESCENCE DE CRISTAUX AROMATIQUES AUX BASSES TEMPÉRATURES

Par Paul PESTEIL et Marc BARBARON,
Laboratoire de Recherches physiques de la Sorbonne, Paris.
Laboratoire Aimé Cotton, Bellevue.

Sommaire. — Étude expérimentale des spectres de fluorescence de monocristaux orientés (tétraphényl-1.1.4.4 butadiène-1.3, anthracène, diphényle, acénaphtène) entre 20 et 2° K. La résolution des bandes, larges à la température ordinaire, en raies plus ou moins fines, donne les renseignements suivants sur la transition électronique : position exacte de la raie 0′-0″, structure vibrationnelle, orientation du dipôle dans le plan de la molécule. Les résultats sont plus faciles à interpréter que ceux qu'on obtient à la température ordinaire.

1. **Généralités.** — L'utilisation des spectres de fluorescence en vue de l'étude de la structure des molécules organiques exige une moisson très ample de résultats expérimentaux. Les théories des transitions électroniques responsables de l'absorption et de la fluorescence [1] prévoient non seulement la valeur de la force oscillatrice, mais encore l'orientation du dipôle. Les méthodes expérimentales utilisées pour reconnaître si une transition est permise consistent à observer les effets de solvant, de température et de substitution sur la position et l'intensité des bandes; enfin, les formules bien connues de F. Perrin [2] donnent des indications précieuses sur la durée de vie et sur l'anisotropie de la transition. Cependant, l'étude de la polarisation de la fluorescence des monocristaux permet seule de connaître directement l'orientation du dipôle dans la molécule à partir des structures cristallines fournies par les rayons X [3].

L'utilisation de monocristaux a des inconvénients, car certaines transitions peuvent être exaltées ou bien affaiblies par le champ cristallin anisotrope; mais on peut aussi faire la même critique aux solutions, dans lesquelles peut régner un ordre à courte distance susceptible de provoquer des effets analogues. La séparation de deux transitions de fréquences voisines est à peu près impossible dans le cas des solutions; par contre, une orientation favorable des molécules dans le réseau peut permettre d'étudier séparément deux spectres inextricablement emmêlés dans un milieu désordonné [4].

La largeur des bandes à 20° C constitue encore un obstacle à l'étude de la structure vibrationnelle. L'origine de cet élargissement est très discutée; les facteurs qui y contribuent seraient les suivants : effet Döppler, variation au hasard des effets Stark et Zeeman [5]; il est difficile d'y ajouter l'incertitude sur la position du niveau excité qui découle de la relation d'Heisenberg ($\Delta E \, \Delta T = h$ ou $\nu\tau = 1$) car cela conduirait à des durées de vie τ de l'ordre de 10^{-14} s, bien inférieures à celles qui ont été mesurées (10^{-7} à 10^{-9} s pour les molécules organiques). Cependant, tous ces effets diminuent par abaissement de la température et l'on peut obtenir une résolution importante, à condition de descendre assez près du zéro absolu. La température de 77° K obtenue avec l'azote liquide ne suffit pas, comme nous le verrons dans un cas précis.

Les spectres de fluorescence résolus en raies sont plus faciles à interpréter que les spectres d'absorption correspondants, car on trouve, dans leur structure vibrationnelle, des fréquences bien connues par l'étude de la diffusion et de l'absorption infrarouge des molécules à l'état normal. C'est pourquoi nous avons entrepris d'abord l'étude de la fluorescence de quelques substances organiques plongées dans l'hydrogène ou l'hélium liquides.

2. **Montage.** — Une étude concernant l'optique des solides aux basses températures fut entreprise par l'un de nous [6] dès 1945 et commença par des mesures d'indices. Pour étudier l'absorption et la fluorescence, il fut construit un appareil tel que le solide peut baigner dans l'H_2 ou l'He liquides (*fig.* 1). En pompant sur l'hydrogène, on peut abaisser facilement la température à 14° K et arriver à 2° K avec l'hélium. On peut prolonger les poses aussi longtemps qu'on le désire à 14° K et pendant 1 h seulement à 2° K. C'est cet appareil que nous avons utilisé.

Le faisceau de lumière excitatrice, provenant d'un arc au mercure Cotton, tombe sur la surface de l'échantillon. Dans le cas du tétraphényl-1.1.4.4, butadiène-1.3 et de l'anthracène, un filtre en verre de Wood limite l'excitation aux radiations de longueurs d'onde comprises entre 3 100 et 3 900 Å. Nous n'avons pas pu trouver de filtre convenable pour exciter la fluorescence du diphényle et de l'acénaphtène. Tous les filtres que nous avons essayés pour arrêter les radiations de longueurs d'onde supérieures à 3 000 Å (puisque le domaine de fluorescence de ces substances va approximativement de 3 000 à 3 700 Å) avaient une transparence tellement faible pour les longueurs d'onde inférieures à 3 000 Å qu'il a été impossible d'obtenir des spectres de fluorescence en des temps accep-

tables. Il est évident que, dans ces conditions, les spectres de fluorescence contiennent de nombreuses raies du mercure.

La lumière de fluorescence sort verticalement vers le bas (*fig.* 2); elle est renvoyée horizontalement par un prisme de silice, après passage à travers un prisme biréfringent collé au glucose-cristal et deux lames demi-onde en mica muscovite (¹) convenablement orientées de façon à rendre parallèles les deux vibrations qui sont analysées par un spectrographe (A_2-Huet pour le visible et Hilger moyen pour l'ultraviolet).

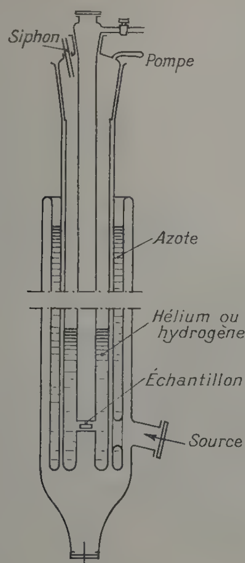


Fig. 1.

Nous avons étudié les monocristaux suivants, préparés par fusion : tétraphénylbutadiène, anthracène, diphényle (²) et acénaphtène. Ces cristaux avaient leurs arêtes parallèles aux trois axes *p*, *m*, *g* de l'ellipsoïde des indices et nous leur avons donné plusieurs orientations afin d'exciter et d'observer les molécules sous des angles différents. Les polarisations ne varient pas avec la température et la transition semble unique, sauf pour l'acénaphtène; ce sont les mêmes transitions que l'un de nous a trouvées à 20° C [3].

3. **Résultats.** — *a. Tétraphénylbutadiène* (TPB). — Le spectre de fluorescence du TPB à 20° C présente un seul maximum très étalé vers 23 250 cm^{-1}; à 14° K, on n'obtient pas toute la résolution attendue, mais cinq bandes encore très larges; les maxima se situent à peu près aux fréquences suivantes : 21 850, 22 620, 23 090, 24 230 et 24 840 cm^{-1}. A 77° K, le spectre se compose de deux bandes dont les maxima se situent à 22 020 et 23 140 cm^{-1}. On note donc un déplacement de 170 cm^{-1} vers les basses fréquences de la bande située vers le rouge lorsqu'on passe de 77 à 14° K. Cela représente un effet bathochrome de 2,7 cm^{-1}/degré. Cet effet de température est de même sens et a la même valeur que celui trouvé par l'un de nous entre 290 et 130° K pour la bande d'absorption du TPB en solution dans le polystyrolène. Le déplacement de la bande 23 140 cm^{-1} est plus faible; cela s'explique aisément si l'on remarque que la réabsorption, encore notable dans cette région à 77° K, déplace le maximum de cette bande vers le visible. Il y aurait intérêt à atteindre 2° K afin d'obtenir une résolution supérieure; nous espérons faire cette étude prochainement.

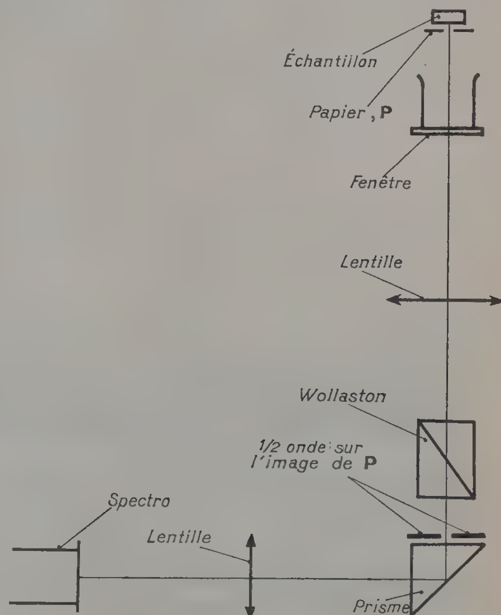


Fig. 2.

b. Anthracène. — Le spectre d'absorption de l'anthracène à 20° K a été étudié dès 1936 par Obreimov et Prikhotjko [7]. Ces auteurs ont utilisé des lamelles cristallines perpendiculaires au plan de clivage (001). Ils ont noté qu'une partie importante du spectre proche ultraviolet ne se résoud pas en raies et les sept raies observées n'ont pas été attribuées à des fréquences de vibration; mais la raie la plus intense, située à 25 109 cm^{-1} semble être due à la transition électronique pure 0″-0′. L'année suivante, les mêmes auteurs ont publié une étude du spectre de fluorescence de l'anthracène [8], mais nous n'avons pu en prendre connais-

(¹) Nous avons vérifié que ces lames sont transparentes pour des radiations de longueurs d'onde supérieures à 2 900 Å.

(²) Ces cristaux ont été préparés par M. L. Pichat que nous remercions pour son obligeance.

sance. D'après un Mémoire ultérieur [9], Obreimov et Prikhotjko ont trouvé les fréquences de vibration suivantes : 40, 370, 1170; 1270 et 1410 cm^{-1}, voisines de celles obtenues par Manzoni [10] et Fruhling [11] par diffusion.

TABLEAU I.

Fréquences de vibration actives en Raman (en cm^{-1}).

Fruhling.			Manzoni.					
46	68	120	388	521	751	1007	1161	1178
			1262	1400	1478	1558	1631	

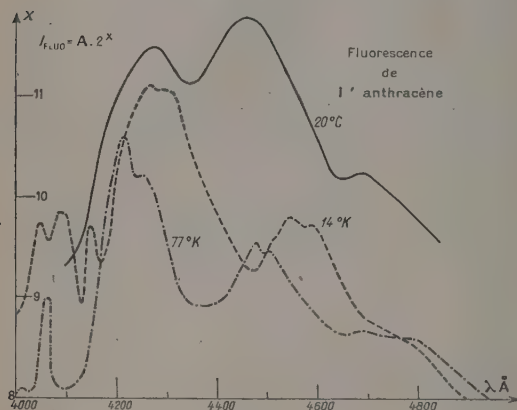


Fig. 3.

de l'hydrogène liquide est absolument nécessaire pour l'obtenir.

Le tableau II donne la fréquence en cm^{-1} des raies de fluorescence, leur intensité (TF, très forte; F, forte; m, moyenne; f, faible; tf, très faible; l, large), et leur attribution, lorsque nous y sommes parvenus.

Notons que la raie 0′-0″ se trouve à 24 899 cm^{-1} et qu'elle diffère de 210 cm^{-1} de la raie 0″-0′ trouvée en absorption par Obreimov et Prikhotjko. Une différence de cet ordre a déjà été signalée par Sambursky et Wolfsohn [12] dans le cas de solutions liquides à 20° C et attribuée par ces auteurs à l'énergie d'interaction du dipôle et du champ intermoléculaire.

Tsujikawa et Kanda [13] ont étudié aussi le spectre de fluorescence de l'anthracène, mais ils n'ont pas obtenu une résolution comparable à la nôtre, peut-être parce que leur cristal n'était pas en contact direct avec l'hydrogène liquide.

Ajoutons aussi que sept raies (désignées dans le tableau II par la lettre *a*) et trois bandes larges d'absorption se superposent au spectre de fluorescence et que ces dernières masquent probablement quelque raies de fluorescence correspondant à des transitions 0′-1″ et 1′-1″.

La plupart des raies se déduisent de la transition 0′-0″, située à 24 899 cm^{-1} en lui retranchant une fréquence ou une combinaison de deux ou trois fréquences de vibration. Il est cependant difficile

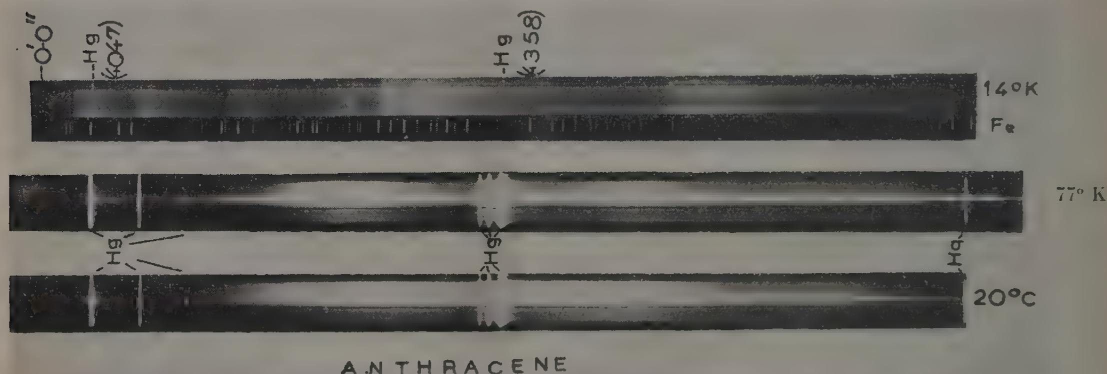


Fig. 4.

Lorsqu'on passe de 20° C à 77° K puis à 14° K, nous avons noté un effet bathochrome important. Sur la courbe de la figure 3, relative à 14° K, nous n'avons pas reproduit les nombreuses raies très rapprochées qui se superposent à des bandes larges dont il est difficile de dire si elles proviennent de la largeur des raies ou de bandes non résolues.

La figure 4 est une reproduction des spectres de fluorescence. On voit bien qu'il n'y a pas de résolution intéressante à 77° K et que l'utilisation d'expliquer le début du spectre, car l'étude de Manzoni, probablement gênée par la très forte fluorescence de l'anthracène autour de la raie 4 358 Å du mercure, ne fournit pas toutes les vibrations actives en Raman (3). Il semble bien toutefois que la transition électronique est unique, comme le

(3) Il serait évidemment intéressant d'obtenir un spectre de diffusion de l'anthracène plus complet pour terminer l'attribution des raies que nous avons observées en fluorescence.

TABLEAU II.

ν'.	Intensité.	Δν'.	Attribution.
24 899....	FF	0	Trans. électr. ν_0
24 857....	f	42	$\nu_0 - 42$
24 782....	*a*	–	–
24 785....	F	114	—114
24 720....	f	179	–
24 712....	*a*	–	–
24 648....	*a*	–	–
24 596....	*a*	–	–
24 580....	f	319	—319
24 560....	f	339	–
24 532....	F	367	367
24 526....	*a*	–	–
24 517....	f	382	–
24 501....	m	398	398
24 480....	F	419	419
24 454....	m	445	445
24 443....	f	456	–
24 399....	FF	500	500
24 389....	f	510	–
24 356....	F	543	500 + 42
24 350....	*a*	–	–
24 340....	F	559	559
24 293....	tf	606	–
24 285....	tf	614	–
24 277....	tf	622	–
24 267....	tf	636	–
24 258....	tf	641	–
24 240....	tf	659	–
24 233....	tf	666	–
24 226....	tf	673	–
24 218....	tf	681	–
24 210....	tf	689	–
24 185....	tf	714	–
24 147....	f	752	752
24 116....	TF	783	367 + 419
24 090....	m	809	–
24 080....	m	819	398 + 419
24 069....	f	830	367 + 419 + 42
24 061....	f	838	–
24 053....	f	846	–
24 027....	TF	872	500 + 367
24 016....	f	883	–
23 990....	f	909	–
23 973....	TF	926	500 + 419
23 948....	m	951	500 + 445
23 933....	f	966	500 + 419 + 42
23 924....	f	975	559 + 419
23 917 ...	m	982	500 + 445 + 42
23 892....	m	1 007	1 007
23 880. ..	F	1 019	
23 870....	f	1 029	–
23 857....	f	1 042	500 + 500 + 42
23 842....	F	1 057	500 + 559
23 822....	F	1 077	319 + 752
23 788....	TF	1 111	319 + 367 + 419
23 732....	F	1 167	1 167
23 692....	F	1 205	1 167 + 42
23 648....	m	1 215	367 + 419 + 445
23 675....	m	1 224	–
23 644....	m	1 255	–
23 633....	TF	1 266	1 266
23 617....	f	1 282	–
23 608....	f	1 291	–
23 599....	TF	1 300	1 266 + 42
23 590....	f	1 309	–
23 488....	TTF	1 411	1 411
23 440....	F	1 459	1 411 + 42
23 405....	F	1 494	445 + 500 + 559
23 366....	m	1 533	1 410 + 114
23 340....	F	1 559	1 559
23 332....	f	1 567	2 × 367 + 2 × 419
23 292....	F	1 607	1559 + 42
23 261....	F	1 638	1 638
23 226....	f	1 673	1 559 + 114
23 217....	f	1 682	1 638 + 42
23 200....	f	1 699	–
23 158....	f	1 741	1 638 + 114
23 114....	F	1 785	1 410 + 367
23 100....	f	1 799	–
23 070....	m	1 829	1 411 + 419
23 000....	f	1 899	1 410 + 366 + 114
22 992....	m	1 907	1 410 + 500
22 966....	m	1 933	1 559 + 367
22 956....	f	1 943	1 410 + 500 + 42 ?
22 900....	m	1 999	1 638 + 367
22 761....	f	2 138	1 638 + 500
22 736....	TF	2 163	1 410 + 752
22 690....	m	2 209	1 410 + 752 + 42
22 675....	f	2 224	1 410 + 398 + 419
22 667....	m	2 232	1 559 + 559 + 114
22 590....	TF	2 309	1 559 + 752
22 557....	F	2 342	1 559 + 419 + 367
22 524....	F	2 375	1 559 + 398 + 419
22 474....	m	2 425	1 410 + 1 007
22 433....	F	2 466	1 410 + 500 + 559
22 383....	F	2 516	1 638 + 500 + 367
22 330....	F	2 570	1 410 + 1 167
22 320....	f	2 579	–
22 312....	f	2 588	–
22 304....	f	2 595	–
22 296....	f	2 603	–
22 288....	f	2 611	–
22 224....	TF	2 675	1 410 + 1 266
22 185....	F	2 714	1 410 + 1 266 + 42
22 090....	TF	2 809	1 410 + 1 410
22 034....	F	2 865	1 410 + 1 410 + 42
22 013....	m	2 886	1 410 + 1 410 + 367
21 943....	TF	2 956	1 410 + 1 549
21 905....	m	2 994	–
21 886 ...	F	3 013	1 410 + 1 559 + 42
21 870....	F	3 029	1 410 + 1 638 ?
21 816....	F	3 083	1 410 + 1 638 + 42
21 784....	F	3 115	1 559 + 1 559
21 605....	F	3 294	1 638 + 1 638
20 670....	m	4 229	1 410 + 1 410 + 1 410

vérifie bien la polarisation, qui est la même pour toutes les raies.

Si l'on rapporte les quelques raies d'absorption trouvées à la raie 25 109 cm^{-1} donnée par Obreimov et Prikhotjko, on trouve les fréquences de vibration : 327, 397, 461, 513 et 759, très voisines des fréquences suivantes que nous avons trouvées en fluorescence : 319, 398, 445, 500 et 752.

Quant aux bandes d'absorption, qui sillonnent le début du spectre de fluorescence, on peut en situer les maxima vers 24 580, 24 210, 23 970 et 23 800 cm^{-1}. Si l'on admet que la transition électronique pure 0″-0′ est la forte bande trouvée par les auteurs russes vers 25 380 cm^{-1}, on trouve qu'elles correspondent aux fréquences de vibration suivantes : 800, 1160, 1400 et 1570 cm^{-1}.

c. Diphényle. — Le spectre de fluorescence du diphényle a pu être étudié à 2° K. Les résultats que nous publions sont relatifs à cette température. Les raies sont larges et la faible dispersion du spectrographe (200 cm^{-1} environ vers 3 300 Å) diminue encore la précision des pointés. La figure 5 reproduit la partie de haute fréquence de ce spectre (les raies les plus intenses sont des raies du mercure). L'excitation très forte, nécessaire pour obtenir la partie H. F. du spectre, permet d'obtenir deux domaines de fluorescence. Le premier, vers les hautes fréquences, correspond à la transition S → S (S, singulet) dont la raie 0′-0″ se trouve à 32 480 cm^{-1}; le deuxième provient probablement de la transition T → S (T, triplet), son origine se situe à 24 866 cm^{-1}. Malgré la faible dispersion du spectrographe Hilger moyen dans cette région, on constate que les fréquences de vibration sont assez voisines de celles trouvées par Frühling [11]. Il ne semble donc pas que ce dernier spectre soit produit par une impureté (anthracène par exemple).

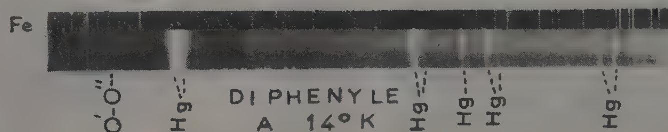


Fig. 5.

TABLEAU III.

Spectres de fluorescence du diphényle à 2° K.

I. SPECTRE H. F. (S → S).

ν′.	Intensité.	Δν′.	Attribution.
33 340.......	f	860	–
33 200.......	f	720	–
32 900.......	f	420	–
32 770.......	f	290	–
32 610.......	f	130	–
32 480.......	f	0	Trans. électr. ν_0
32 425.......	f	55	$\nu_0 - 55$
32 320.......	f	160	—161
32 160.......	m	320	324
32 110.......	f	370	324 + 55
31 745.......	f	735	730
31 710.......	f	770	778
31 680.......	f	800	731 + 55 ?
31 640.......	f	840	778 + 55
31 600.......	f	880	730 + 160
31 525.......	m	955	958
31 480.......	m	1 000	993
31 455.......	m	1 025	1 028
31 420.......	f	1 060	993 + 55
31 360.......	F	1 120	958 + 160
31 345.......	F	1 135	141
31 320.......	f	1 160	1 157
31 260.......	f	1 220	1 213
31 200.......	F	1 280	1 270
31 160.......	f	1 320	1 316
31 060.......	f	1 420	1 270 + 160
31 020.......	f	1 460	1 452
30 980.......	m	1 500	1 502
30 900.......	m	1 580	1 584
30 870.......	m	1 610	1 600
30 840.......	m	1 640	1 584 + 60
30 755.......	m	1 725	1 584 + 160 ?
30 710.......	f	1 770	1 600 + 160
30 700.......	f	1 780	993 + 778
30 660.......	m	1 820	1 500 + 324
30 625.......	f	1 855	–
30 540.......	f	1 940	993 + 958
30 500.......	f	1 980	2 × 993
30 460.......	f	2 020	1 028 + 993
30 435.......	f	2 045	2 × 1 028
30 410.......	m	2 070	1 028 + 993 + 55
30 350.......	f	2 130	993 + 1 140
30 330.......	m	2 150	993 + 1 157
30 300.......	f	2 180	1 157 + 1 028
30 260.......	f	2 220	993 + 1 213
30 215.......	f	2 265	993 + 1 270
30 200.......	f	2 280	2 × 1 141
30 160.......	f	2 320	2 × 1 157
30 085.......	f	2 395	1 270 + 1 140

Le spectre de fluorescence s'étend bien plus loin, mais l'enchevêtrement des raies est tel que les pointés sont illusoires.

TABLEAU III (suite).

II. SPECTRE B. F. (T → S).

ν'.	Intensité.	Δν'.	Attribution.
25 254.......	l	388	–
24 866.......	lF	0	Trans. électr. ν_0
24 408.......	?	458	–
24 240.......	F	626	ν_0 — 605
24 147.......	F	719	— 731
24 086.......	F	780	778
24 005.......	l	861	–
23 850.......	l	1 016	1 028
23 603.......	F	1 263	1 270
23 465.......	f	1 401	605 + 778
23 360.......	l	1 506	1 502
23 200.......	lF	1 666	1 600 ?
23 215.......	f	2 651	1 600 + 1 028 ?
22 100.......	f	2 766	1 263 + 1 506
21 980.......	f	2 886	1 600 + 1 270
21 900.......	f	2 966	–
21 660.......	f	3 206	2 × 1 600

Avant d'énumérer dans le tableau III les fréquences des raies de fluorescence, ajoutons que la polarisation est la même pour les deux spectres S → S et T → S; c'est celle qui correspond à des transitions $A_{1g} \rightarrow B_{1u}$, parallèles à la longueur de la molécule, comme à 20° C [3].

d. Acénaphtène. — Le cas de l'acénaphtène est particulièrement intéressant et montre bien toutes les ressources de la méthode. Le cristal est orthorhombique et la maille de symétrie C_{2v}^2 (*Pcm*) contient quatre molécules groupées en deux paires indépendantes. La structure a été étudiée par Kitajgorodskij [14]. Si l'on appelle M la direction parallèle à la liaison C—C commune aux deux noyaux benzéniques et L la direction qui lui est perpendiculaire dans le plan de la molécule, on trouve que L_I et L_{II} sont parallèles à l'axe cristallographique *b*, que M_I est parallèle à *a* et que M_{II} fait avec *c* un angle de 27°. Cette orientation des molécules est très favorable à une séparation de deux spectres correspondant à des vibrations respectivement parallèles à L et à M. L'étude à 20° C [4] a montré l'existence de deux transitions voisines de symétries différentes.

Les résultats sont présentés dans le tableau IV, qui se divise en deux parties, comme dans le cas du diphényle. Les trois transitions électroniques se situent respectivement aux fréquences suivantes : 30 542, 30 018 et 23 628 cm⁻¹ (cette dernière étant probablement une transition T → S). Ajoutons que le spectre T → S est déjà résolu à 14° K, alors qu'il faut atteindre 4° K pour résoudre les deux autres spectres.

Les fréquences Raman dont nous nous sommes servis dans la colonne réservée aux attributions ont été prises dans l'étude de Ch. Reichei [15] et dans celle de J. P. Mathieu, M. et J. Ecollan [16].

Remarquons enfin que, même à 4° K, les raies sont larges, ce qui interdit la précision des pointés.

TABLEAU IV.

I. SPECTRES H. F (S → S).

a. Transition parallèle à M.

ν'.	Intensité.	Δν'.	Attribution.
30 018.......	TF	0	Trans. électr. ν_0
29 979.......	f	39	ν_0 — 43
29 844?......	f	174 ?	
29 813.......	f	205	ν_0 — 229
29 693.......	F	325	343 ?
29 652.......	l	366	343 + 43
29 612.......	l	406	416
20 472.......	F	546	544
29 426.......	m	592	544 + 43
29 386.......	m	632	634
29 307.......	l	711	718
29 245.......	f	773	768
29 161.......	f	857	634 + 229
29 128.......	f	890	546 + 343
29 106.......	f	912	936
29 053.......	m	965	895
29 010.......	f	1 008	985 + 43
28 973.......	f	1 045	1 051
28 901.......	TF	1 117	1 119
28 862.......	ml	1 156	1 119 + 43
28 798.......	l	1 220	1 217
28 760.......	l	1 258	1 246
28 651.......	f	1 367	1 358
28 590.......	ml	1 428	1 434
28 530.......	f	1 488	1476 ou 1434 + 43
28 477.......	f	1 541	–
28 437.......	f	1 581	1 570
28 326.......	f	1 992	1 119 + 544 ?
28 265.......	f	1 753	1 119 + 632

b. Transition parallèle à L.

ν'.	Intensité.	Δν'.	Attribution.
(30 542)......	–	0	Trans. électr. ν'_0
29 994.......	f	548	ν'_0 — 544
29 172.......	f	1 370	1 358
29 108.......	F	1 434	1 434
29 067.......	f	1 475	1 476
28 947.......	f	1 595	1 599

Remarque. — La raie ν'_0 = 30542 n'a pu être observée sur la plaque; elle a été calculée à partir de la raie 29 108 cm⁻¹ que nous avons considérée comme provenant de la combinaison ν'_0 = 1434 cm⁻¹, parce que l'on obtient de cette manière la meilleure attribution des autres raies de fluorescence.

TABLEAU IV (*suite*).

II. SPECTRE B. F. (T → S).

ν'.	Intensité.	Δν'.	Attribution.
23 628	F	0	Trans. électr. ν_0
23 593	f	35	$\nu_0 - 43$
23 529	f	99	97
....			
22 604	F	1 024	1 051
22 506	f	1 122	1 119
22 421	F	1 207	1 217
22 290	f	1 338	1 358
22 213	F	1 415	1 409
22 158	F	1 470	1 476
22 025	F	1 603	1 599
21 982	F	1 646	1 599 + 43
21 890	F	1 738	1 051 + 668
21 787	m	1 841	1 207 + 634
21 716	f	1 912	1 409 + 500
21 670	f	1 958	1 409 + 548
21 592	f	2 036	1 051 + 985
21 545	f	2 083	2 × 1 051
21 420	f	2 208	1 117 + 1 083
21 364	f	2 264	1 083 + 1 182
21 337	f	2 291	1 182 + 1 119
21 284	f	2 344	2 × 1 182
21 159	f	2 469	2 × 1 246?

Remarque. — La lacune qui existe entre 23 529 et 22 604 cm^{-1} provient du fait qu'un groupe de raies du mercure, très intense dans cette région, masque complètement les raies de fluorescence de l'acénaphtène. Enfin, le spectre dont l'origine se situe à 23 628 cm^{-1} et qui correspond à la transition T → S du tableau IV ne semble pas polarisé.

Les deux transitions H. F. dont les origines sont situées à 30 018 et 30 542 cm^{-1} se déduisent probablement des deux transitions $A_{1g} \rightarrow B_{2u}$ et $A_{1g} \rightarrow B_{1u}$ dont parle Platt dans son Mémoire de 1949 [17]. On les retrouve aussi dans le spectre de fluorescence du naphtalène à 20° C. Nous n'avons pas entrepris l'étude du naphtalène à 20° K, car nous savons qu'elle a été faite par Mac-Clure et Schnepp qui doivent en publier les résultats incessamment.

4. **Conclusion.** — Nous avons discuté nos résultats au fur et à mesure de leur exposé; pour conclure, nous nous contenterons de les rassembler succinctement :

1° Le spectre de fluorescence du TPB ne se résoud pas en raies à 14° K.

2° Le spectre de fluorescence de l'anthracène semble provenir d'une seule transition électronique, parallèle à la largeur de la molécule, dont l'origine se situe à 24 899 cm^{-1}. On observe une différence de 210 cm^{-1} entre les transitions 0″-0′ et 0′-0″.

3° Nous avons trouvé deux spectres de fluorescence du diphényle; leurs origines se situent respectivement à 32 480 et 24 866 cm^{-1}. La partie B. F. semble être une transition T → S.

4° Nous avons trouvé trois spectres de fluorescence de l'acénaphtène. Les deux premiers, dont les origines se trouvent à 30018 et 30542 cm^{-1} sont des transitions respectivement parallèles à la largeur et à la longueur de la molécule; ils sont très polarisés. Le troisième est une transition T → S dont l'origine est à 23 628 cm^{-1}.

Il est malheureusement difficile pour le moment de tirer un meilleur parti de ces résultats, car la classe de symétrie des vibrations des molécules étudiées n'est pas aussi bien connue que pour le cas du benzène [18]. Il est donc impossible, dans l'état actuel de nos connaissances, de faire, pour ces substances, une analyse analogue à celle faite par H. Sponer sur le benzène et ses dérivés de substitution [19], [20].

Nous remercions MM. les Professeurs P. Jacquinot, J. P. Mathieu et C. F. Squire pour l'intérêt qu'ils ont porté à nos recherches effectuées au Laboratoire Aimé Cotton de Bellevue, ainsi que M. Spöndlin grâce à qui ces travaux ont pu être réalisés.

Manuscrit reçu le 12 octobre 1953.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] PULLMAN B. et PULLMAN A. — Les théories électroniques de la Chimie organique, Masson, 1952.
[2] PERRIN F. — *Thèse*, Paris, 1929.
Mlle LAFFITTE. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 148.
[3] KRISHNAN et SESHAN. — *Acta Phys. Pol.*, 1936, 289.
BENEL. — *Thèse*, Bordeaux, 1940.
PESTEIL P. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **234**, 2532; 1952, **235**, 150 et 1384.
[4] PESTEIL P. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **237**, 235.
[5] SINSHEIMER, SCOTT et LOOFBOUROW. — *J. Biol. Chem. U.S.A.*, 1950, **187**, 299.
[6] BARBARON M. — *Ann. Physique*, 1951, **6**, 899.
[7] OBREIMOV et PRIKHOTJKO. — *Sow. Phys.*, 1936, **9**, 34.
[8] OBREIMOV et PRIKHOTJKO. — *J. Exper. Theor. Phys.*, 1936, **6**, 1062.
[9] OBREIMOV et SHABALDAS. — *J. Phys. S.S.S.R.*, 1943, **7**, 168.
[10] MANZONI. — *La ricerca Scientifica*, ser. II, 1936, **1**, 718.
[11] FRUHLING. — *Ann. Physique*, **6**, 401-480.
[12] SAMBURSKY et WOLFSOHN. — *Trans. Faraday Soc.*, 1940, **36**, 426.
[13] TSUJIKAWA et KANDA. — *Sc. Rep. R.I.T.U.*, 1952, **4**, 471.
[14] KITAJGORODSKIJ. — *Zur. Fiz. Khim.*, 1949, **23**, 1036.
[15] LUTHER Horst et REICHEI Christa. — *Z. Phys. Chem.*, 1950, **195**, 103.
[16] ECOLLAN J. — *Diplôme d'études supérieures*, Paris, 1953, n° 1422.
[17] PLATT et KLEVENS. — *J. Chem. Phys.*, 1949, **17**, 471.
[18] INGOLD. — *J. Chem. Soc.*, 1946, p. 222; 1948, 406.
[19] SPONER H. et TELLER E. — *Rev. Mod. Phys.*, 1941, **13**, 75.
[20] SYDNEY-LEACH. — *Thèse*, Paris, 1953.

SUR UNE PROPRIÉTÉ DES ALLIAGES BINAIRES DU FER

Par T. G. OWE BERG,
Avesta, Suède.

Sommaire. — Les systèmes formés par le fer avec des éléments à nombre atomique plus élevé contiennent deux phases, la solution solide parfaite α, caractérisée par une densité électronique uniforme, et une phase α', caractérisée par une densité électronique non uniforme dans laquelle les électrons s de l'élément ajouté interagissent par préférence avec les électrons s des atomes Fe et pas avec leurs électrons $3d$. L'étendue du domaine α est déterminée par l'énergie libre des électrons $3d$; celle du domaine α' par la condition que $\Delta x\,(N - 2) \leqq 0,2$, où Δx est l'étendue du domaine α' et N est le nombre d'électrons s par atome de l'élément ajouté. A des concentrations plus élevées, un composé intermétallique précipite.

Dans ce qui suit nous considérons les conditions à l'équilibre à 0° K seulement.

L'atome libre (gazeux) d'un métal de transition de la quatrième période contient un certain nombre d'électrons en dehors d'une couche d'électrons remplie, dont deux occupent la couche $4s$ et le reste la couche $3d$ selon la règle de Hund. La couche $3d$ a une capacité de 10 électrons. Quand le nombre actuel d'électrons $3d$ est n_{3d} il y a n_{3d} électrons $3d$ célibataires si $n_{3d} < 5$, est $10 - n_{3d}$ électrons $3d$ célibataires si $n_{3d} > 5$.

Dans l'atome métallique quelques-uns de ces électrons $3d$ célibataires deviennent couplés à cause de l'influence des atomes voisins. L'atome peut « emprunter » des électrons à ses voisins. Comme, d'après la règle de Hund, il y a toujours deux électrons $4s$, l'énergie potentielle des électrons a un minimum quand

$$\frac{\partial V_{3d}}{\partial n_{3d}} = 0. \tag{1}$$

Dans une Communication précédente [1] nous avons montré que (1) est en bonne concordance avec l'observation pour Fe, Co et Ni quand on emploie la formule de Slater [2] pour V_{3d}.

V_{3d} est une fonction du nombre atomique Z, à savoir la densité électronique, et de n_{3d}, n_{3d} étant lié à Z par (1). Pour un alliage de deux éléments Z_1 et Z_2, la densité électronique résultante est différente de celles de Z_1 et de Z_2. Sous la condition que la densité électronique soit uniforme,

$$Z = x Z_1 + (1 - x) Z_2 \tag{2}$$

quand x et $(1 - x)$ sont les concentrations atomiques des deux éléments. Alors, dans un alliage de Fe et Ni, la valeur de Z est la même pour les atomes Fe et les atomes Ni et donnée par (2). Aussi, la valeur de n_{3d}, étant déterminée par (1) avec (2), est la même pour les deux atomes et, par conséquent, leurs moments magnétiques μ sont aussi les mêmes. En effet, on ne peut pas distinguer entre atomes Fe et atomes Ni dans l'alliage, parce que l'alliage ne contient pas d'atomes Fe et Ni mais des atomes à nombre atomique Z.

Quand un élément de transition est allié avec un élément ordinaire, (1) et (2) s'appliquent encore. Cependant, comme la couche $3d$ de l'élément ordinaire est remplie, l'élément ordinaire influence la valeur de Z d'après (2), mais il ne peut pas contribuer directement au moment magnétique de l'alliage, et, évidemment, la formule (1) n'est pas applicable à l'élément ordinaire.

Nous appelons une phase de l'alliage « *phase* α » si (2) est valable, c'est-à-dire si la densité électronique est uniforme. Une phase à densité électronique non uniforme, par exemple où l'élément de transition a la même densité électronique que dans le métal pur, sera appelée « *phase* α' ».

Un système en équilibre est caractérisé par un minimum de son énergie libre. Un alliage sera un alliage α ou un alliage α' suivant le changement de l'énergie libre causé par l'addition d'un atome de l'élément de l'alliage. Alors, à 0° K, si $\frac{d}{dx} V_{3d}$ est plus petit, à savoir plus négatif, pour la densité électronique uniforme que pour une densité électronique non uniforme, l'alliage est du type α; mais si une densité électronique non uniforme donne une valeur plus petite de $\frac{d}{dx} V_{3d}$, l'alliage est du type α'.

La formule de Slater [2] n'est pas suffisamment précise pour l'étude de $\frac{d}{dx} V_{3d}$. Par exemple, elle ne tient pas compte du minimum de n_{3d} à $Z = 26,25$, c'est-à-dire du maximum de μ, trouvé dans les alliages Fe-Co, Fe-Ni et d'autres. Pour l'étude des alliages, en particulier dans le domaine $26 < Z < 27$, il faut donc employer des données empiriques.

Quand des éléments à valeurs supérieures de Z sont ajoutés à Co ou à Ni, μ est une fonction monotone de Z. Mais quand de tels éléments sont ajoutés à Fe, μ passe par un maximum. Nous admettons que ce maximum de $\mu(Z)$ correspond à une dépression de $V_{3d}(Z)$. Alors, quand Ni est ajouté à Fe,

V_{3d} tombe plus vite si (2) est valable que pour un mélange de Fe et Ni, c'est-à-dire

$$\frac{d}{dx} V_{3d}(Z) < \frac{d}{dx}[(1-x)V_{3d}(26) + xV_{3d}(28)]. \quad (3)$$

où Z (x) est donné par (2). Ce système forme donc des alliages α pour de petites valeurs de x. Mais si $x = x_0$ et Z (x_0) = Z_0 sont tels que

$$\frac{d}{dx} V_{3d}(Z) > \frac{d}{dx}[(1-x+x_0)V_{3d}(Z_0) + (x-x_0)V_{3d}(28)], \quad (4)$$

un alliage α' se forme et le système contient deux phases : α de la composition x_0 et α' formé de cette phase α et de Ni.

Quand un élément ordinaire est ajouté à Fe, cette dépression de V_{3d} est plus petite, multipliée par $(1-x)$, puisque la couche $3d$ de l'élément ordinaire est toujours remplie, et α' est formé dès le début. C'est ce qu'on a trouvé. Nous avons montré dans une Communication précédente [3] que les systèmes binaires du fer contiennent un domaine où μ est une fonction linéaire de la composition, l'élément ajouté se comportant simplement en diluant.

Avec les métaux des groupes de Co et de Ni le fer forme des alliages α à partir du fer pur et, à des concentrations suffisamment élevées du métal ajouté, des alliages α'. Les éléments ordinaires Al, Si, V ne donnent que des alliages α'. Cela suit qualitativement de la discussion plus haut. A défaut d'une formule exacte de V_{3d} dans ce domaine de Z nous ne pouvons pas, malheureusement, calculer l'étendue de la phase α. Nous nous attendons, cependant, à ce qu'elle soit, dans le système Fe-Co, un petit peu plus petite que le double de celle du système Fe-Ni, puisque les différences entre les valeurs de Z sont 1 et 2, respectivement. En effet, le domaine α est 0 à 12 pour 100 dans les systèmes Fe-Ni et Fe-Pt et 0 à 22 pour 100 dans le système Fe-Rh.

L'étendue du domaine α' qu'il y ait un domaine α ou non, est donnée par la formule empirique [3]

$$\Delta x = \frac{0,2}{N-2}, \quad (5)$$

N désignant le nombre des électrons cohésifs (s ou de valence) par atome de l'élément ajouté. Alors, le domaine α' n'est pas étendu jusqu'à 100 pour 100 de l'élément ajouté. Au bout du domaine α' un composé intermétallique précipite. La formule (5) s'applique aux systèmes binaires de Fe avec Al, Si, V, Mn, Ni, Pt, Rh, Ru, Os, Ir, et, probablement, W.

Pour simplifier, nous limitons la discussion de la formule (5) au cas où il n'y a pas d'alliages α.

Nous admettons que la densité des électrons s est deux par atome comme d'après la règle de Hund. Des N électrons par atome de l'élément ajouté il y a donc N-2 disponibles pour interaction avec les électrons des atomes Fe. Si ces N-2 électrons sont uniformément distribués mais se couplent de préférence avec les 0,2 électrons s par atome Fe, qui ne sont pas accouplés aux électrons $3d$ des atomes Fe, et n'interagissent pas avec les électrons $3d$ de l'atome Fe, le nombre des électrons $3d$ célibataires par atome Fe n'est pas influencé par l'élément ajouté. Cette distribution d'électrons exige que

$$x(N-2) \leq 0,2, \quad (6)$$

c'est-à-dire que

$$x = \frac{0,2}{N-2}, \quad (7)$$

comme le demande la formule empirique (5).

Mais si l'on ajoute plus d'électrons, les 0,2 électrons s par atome Fe ne suffisent pas pour les accoupler. Alors, il faut qu'ils se couplent avec des électrons $3d$. Il n'y a que deux possibilités : soit la formation d'un alliage α, ce qui est contradictoire à la condition sur l'énergie libre, soit la formation d'un composé intermétallique. La dernière éventualité de l'alternative est donc réalisée.

Alors, si

$$x \leq \frac{0,2}{N-2} \quad (7)$$

l'alliage est du type α'; si

$$x > \frac{0,2}{N-2} \quad (8)$$

l'alliage contient la phase α' et un composé intermétallique précipité.

Dans le cas où le domaine α' est précédé par un domaine α, rien ne change dans cette discussion, excepté qu'il faut remplacer x par $x - x_0$, x_0 étant la limite du domaine α.

Le travail dont le résultat est rapporté dans cette Communication a été faite dans le laboratoire d'Avesta Jernverks AB (Suède). Nous tenons à exprimer notre gratitude à la Direction d'Avesta Jernverks AB pour avoir bien voulu nous donner l'autorisation de la publier.

Manuscrit reçu le 21 septembre 1953.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Owe Berg, T. G. — *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 566.
[2] Slater, J. C. — *Phys. Rev.*, 1930, **36**, 57.
[3] Owe Berg, T. G. — *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 418.

MESURE DU RAPPORT DES SECTIONS EFFICACES DE FISSION PAR NEUTRONS THERMIQUES DE ^{239}Pu ET DE L'URANIUM NATUREL

Par ANTOINE LÉVÊQUE, RENÉ COHEN et EUGÈNE COTTON,
Service de Physique nucléaire du Commissariat
à l'Énergie atomique,
Centre d'études nucléaires, Gif-sur-Yvette (Seine-et-Oise).

Sommaire. — Le rapport indiqué en titre a été déterminé à l'aide de deux dispositifs expérimentaux différents pour un flux de neutrons thermiques issus d'un canal radial de la pile à eau lourde de Châtillon et trouvé égal à 205,7 ± 4. La signification de ce résultat est discutée et comparée avec les valeurs de sections efficaces publiées par ailleurs.

1. **Introduction.** — Après un an de fonctionnement à la puissance maximum pour laquelle elle avait été construite (5 kW), la pile à eau lourde de Châtillon avait permis de préparer quelques milligrammes de ^{239}Pu. Il avait semblé intéressant, en attendant d'avoir des quantités plus importantes et de pureté plus grande, de mesurer une valeur préliminaire du rapport indiqué en titre (1).

Cette mesure avait fait l'objet le 26 novembre 1951 du dépôt d'un pli cacheté à l'Académie des Sciences (pli ouvert le 4 juin 1952) [1].

Le 7 avril 1952 les autorités atomiques des U.S.A., du Royaume Uni et du Canada « déclassifiaient » des valeurs des sections efficaces de fission de l'uranium naturel et de ^{239}Pu. Ces valeurs semblaient difficilement compatibles avec le résultat de la mesure effectuée à Châtillon fin 1951. Aussi une deuxième mesure fut-elle entreprise en juin 1952, conduisant pratiquement au même résultat que la première [2].

Ce sont ces mesures ainsi que la discussion des valeurs obtenues qui sont présentées dans ce travail.

2. **Principe de la mesure.** — On détermine le rapport $\frac{F_{Pu}}{F_U}$ du nombre de fissions se produisant dans deux couches minces, planes, uniformes, circulaires, de diamètres très voisins, placées *dans le même flux de neutrons thermiques*, de ^{239}Pu et d'uranium naturel contenant respectivement N_{Pu} noyaux de ^{239}Pu et N_U noyaux d'uranium naturel.

On a, dans ces conditions :

$$\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U} = \frac{F_{Pu}}{F_U}\frac{N_U}{N_{Pu}}, \qquad (I)$$

où σ_{Pu} est *la section efficace moyenne de fission pour le faisceau de neutrons utilisés* d'un atome de ^{239}Pu et σ_U est la même grandeur pour un atome moyen d'uranium naturel.

Les N s'obtiennent à partir de la mesure des nombres totaux A_{Pu} et A_U de particules α émises par unité de temps, respectivement par les couches de ^{239}Pu et d'uranium naturel.

$\mathcal{N}_{Pu}$ et $\mathcal{N}_U$ étant les valeurs du nombre de particules α émises par un atome-g respectivement de ^{239}Pu et d'uranium naturel, (I) s'écrit :

$$\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U} = \frac{F_{Pu}}{F_U}\frac{A_U}{A_{Pu}}\frac{\mathcal{N}_{Pu}}{\mathcal{N}_U}. \qquad (II)$$

Des valeurs précises des activités spécifiques α par unité de masse ayant été publiées [4], [5], les valeurs des $\mathcal{N}$ s'en déduisent immédiatement.

3. **Dispositifs expérimentaux.** — *Le faisceau de neutrons utilisé est celui qui sort d'un canal radial, complètement débouché et vidé de son graphite, de la pile à eau lourde de Châtillon* fonctionnant à pleine puissance. Dans ces expériences son intensité était comprise entre 1 et 5.10^6 neutrons.cm^{-2}.s^{-1}.

Les couches de matériaux fissiles ont toujours été déposées sur platine de 50 μ d'épaisseur.

Les dépôts d'uranium ont été obtenus par évaporation thermique d'uranium métallique. Les dépôts de ^{239}Pu ont été préparés à partir de solutions de nitrate de plutonium; le dépôt était fait par évaporation, soit de la solution elle-même, soit d'un mélange de cette solution contenant en outre du nitrate d'ammonium avec du collodion dissous dans l'acétate d'amyle. Dans les deux cas, après évaporation, le dépôt était porté à 800°C pendant environ 1 h, soit à l'intérieur d'un four, soit par chauffage direct.

Les dépôts sont placés normalement à l'axe du faisceau, leurs centres coïncident à mieux que 1 cm près avec cet axe.

(1) On ne trouvait alors dans la littérature qu'une publication relative à la section de fission de ^{239}Pu, indiquant simplement que « $\sigma_{^{239}Pu}$ is somewhat larger than that of ^{235}U » [3].

Les dépôts d'uranium sont bien uniformes comme le montre l'aspect des couleurs de lames minces. Ceux de plutonium le sont certainement moins; la variation d'activité d'une région à l'autre des dépôts qui ont été utilisés pour les mesures était cependant inférieure à 30 pour 100. On pourrait craindre que, dans ces conditions, la relation (I) ne soit plus valable. Cependant, dans la région utilisée du faisceau, le flux est uniforme à environ 2 pour 100 près; la formule est donc certainement vérifiée à mieux que 0,6 pour 100 près. De plus, une expérience préliminaire à l'aide de la chambre double décrite plus loin et utilisant un dépôt de plutonium dans lequel les variations d'intensité d'émission de particules α étaient supérieures à un facteur 2 d'une région à l'autre, n'a indiqué, lors de déplacements de la chambre de quelques centimètres dans le faisceau, qu'une variation de $\frac{F_{\mathrm{Pu}}}{F_{\mathrm{U}}}$ inférieure aux erreurs expérimentales (c'est-à-dire environ 0,7 pour 100); il est donc légitime d'admettre en toute rigueur la validité de (I).

Le matériel électronique a été entièrement réalisé par la Division des Constructions électriques du Commissariat à l'Énergie atomique.

Pour l'amplification des impulsions nous avons utilisé des amplificateurs 2 Mc du type couramment utilisé au C.E.A.; les hautes tensions, les discriminateurs d'amplitude et les échelles de 1000 utilisées étaient aussi des appareils courants.

De plus, on a utilisé un sélecteur à 10 canaux [6], un amplificateur à seuil et deux générateurs d'impulsions dont l'un est capable de fournir des paires d'impulsions séparées par un intervalle de temps connu.

Les déplacements constants imposés à ce matériel par les exigences dues à l'horaire d'utilisation de la pile de Châtillon ont été fréquemment la cause de déréglages ou de pannes, mais dans l'ensemble le matériel utilisé nous a donné entière satisfaction.

A. Première mesure. — *a.* Les dépôts de matériaux fissiles placés dos à dos servent d'électrode H.T. commune à une chambre d'ionisation double permettant la *mesure simultanée de* F_{Pu} *et* F_{U} [2] (*fig.* 1).

On mesure ainsi le rapport $\frac{F_{\mathrm{Pu}}}{F_{\mathrm{U}}}$ du nombre de fissions se produisant *simultanément* dans les deux dépôts : dans ces conditions la relation (I) est valable même pour un flux de neutrons dont l'intensité varie dans le temps, ce qui ne nécessite pas de mesure intermédiaire de comparaison de flux.

Les activités absolues α sont mesurées à l'aide de la chambre double; pour l'uranium une chambre à grille a été également utilisée.

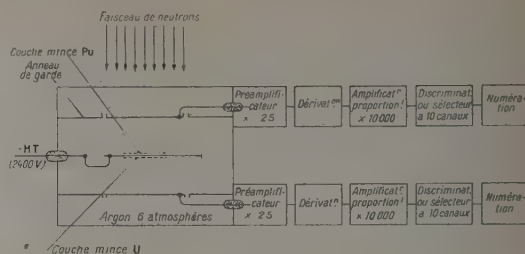


Fig. 1.

b. La chambre d'ionisation double :

Description. — La chambre est représentée sur la figure 2; on a cherché à réaliser la plus grande symétrie possible par rapport au plan médian; c'est dans ce plan qu'est placée l'électrode commune H.T. servant à la fois de support aux couches fissiles et de séparation électrostatique des deux chambres d'ionisation.

Les diamètres des électrodes avaient été choisis suffisamment grands pour permettre l'utilisation de sources ayant jusqu'à 10 cm de diamètre. La chambre est fermée par deux couvercles plans en duralumin d'épaisseur 20 mm, amincis à 3 mm dans la région centrale. Les passages isolants sont décrits par ailleurs [7].

Fonctionnement. — Les taux de comptage rencontrés dans ce travail étaient trop élevés pour permettre d'utiliser correctement la collection complète des électrons et des ions positifs. Nous avons dérivé l'impulsion électronique selon le principe de la méthode mise au point par Sherr et Peterson [8].

Cette méthode, telle que nous l'avons employée,

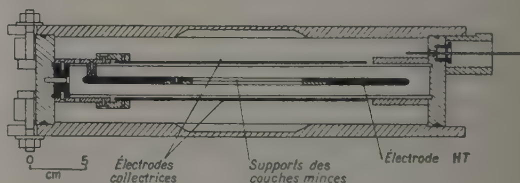


Fig. 2.

a été analysée par ailleurs [9]. Nous avons utilisé les constantes de temps suivantes :

Côté uranium : dérivations : $3.10^{-6}.3.10^{-6}$ s; intégration : 10^{-6} s.

Côté plutonium : dérivations : $10^{-6}.10^{-6}$ s; intégration : 3.10^{-7} s.

Les impulsions recueillies à la sortie de l'amplifi-

[2] Entre les feuilles de platine est placée une plaque d'aluminium de 0,5 mm d'épaisseur destinée à assurer une bonne rigidité de l'ensemble.

cateur doivent [3] dans ces conditions être indépendantes de l'angle d'émission et rigoureusement proportionnelles à l'énergie libérée dans la chambre sauf celles qui sont produites par les particules α de l'uranium naturel. Dans ce dernier cas le choix des constantes de temps résulte d'un compromis entre la dispersion d'énergie due aux variations de l'angle d'émission de la particule et la nécessité d'une amplitude de sortie suffisante pour une analyse précise d'énergie avec notre sélecteur d'amplitude. Notons toutefois que les intensités α des sources d'uranium mesurées à l'aide de la chambre double sont, aux erreurs expérimentales près, égales à celles déterminées à l'aide d'une chambre à grille [4].

B. Deuxième mesure. — La chambre double a été remplacée par une chambre à grille. Les comptages de fissions de l'uranium et du plutonium n'étaient plus simultanés mais s'effectuaient à quelques jours d'intervalle.

La reproductibilité des conditions d'irradiation a été assurée par l'utilisation de deux couches fissiles de même diamètre (voisin de 3 cm) et par le repérage géométrique précis de la position de la chambre par rapport à la pile.

Les mesures de l'activité d'un même détecteur de cuivre (période 12,8 h) placé dans l'axe du faisceau à 2 cm en avant de la couche de matière fissile ont permis de comparer avec précision les flux utilisés pour chacune des mesures.

En principe cette mesure relative des flux, inutile lors de la première détermination, augmentait légèrement l'erreur sur la valeur de $\frac{\sigma_U}{\sigma_{Pu}}$. Par contre la grande stabilité des conditions de fonctionnement de la chambre à grille permettait d'utiliser, lors des mesures de fission, un matériel électronique considérablement allégé par rapport aux expériences de 1951, d'autant plus qu'il suffisait cette fois d'une seule chaîne d'amplification et de sélection d'amplitude. Par suite cette deuxième détermination a finalement été plus précise que la première.

Nous ne nous étendrons pas sur les conditions de fonctionnement de la chambre à grille [11], [13].

Pour cette nouvelle détermination on a utilisé un nouveau dépôt d'uranium ainsi qu'une nouvelle solution de ^{239}Pu.

4. Méthode de numération absolue des particules α et des fragments de fission. — Elle est exposée en détail par ailleurs [12].

(3) Le calcul a été fait en adoptant les valeurs des vitesses de dérive des électrons dans l'argon publiées par Colli et al. [10].

(4) *Cf.* [12], Annexe IV.

Rappelons qu'elle repose sur la validité de la relation [13].

$$A(E) = \frac{A}{2}\left[1 - \sum \frac{\alpha p_i}{2[R_{0i} - R(E)]} + P(E)\right].$$

où A est le nombre de désintégrations α se produisant par unité de temps dans la source ;

$A(E)$ le nombre de particules α d'énergie supérieure à E et détectées dans un angle solide 2π;

p_i la proportion des particules d'énergie initiale E_{0i} $\left(\sum p_i = 1\right)$;

R_{0i} le parcours dans la matière constituant la source des particules d'énergie initiale E_{0i} ;

α une grandeur liée à l'épaisseur de la couche active (épaisseur effective);

$R(E)$ le parcours dans la couche active des particules α d'énergie E;

$P(E)$ un terme traduisant la rétrodiffusion des particules α par le support de la couche.

En posant

$$x = \sum \frac{p_i}{2[R_{0i} - R(E)]},$$

la relation précédente s'écrit :

$$A(x) = \frac{A}{2}[1 - \alpha x + P(x)].$$

Dans le travail cité nous avons montré que dans un domaine limité de x ($\sim 0,5 < x < \sim 1,0$), on peut écrire

$$A(x) = \frac{A}{2}(1 + a)[1 - (\alpha + b)x], \qquad \text{(III)}$$

où a et b sont des constantes dépendant des énergies E_{0i}, de la nature du support de la couche et des calculs de Crawford [14] sur la rétrodiffusion.

En particulier pour un support de platine épais :

$a = 0,017$ et $b = 0,084$ mm air équivalent pour ^{239}Pu;

$a = 0,021$ et $b = 0,095$ mm air équivalent pour l'uranium naturel.

En pratique il suffit d'obtenir les valeurs expérimentales de $A(x)$ dans le domaine indiqué et d'extrapoler la droite obtenue jusqu'à $x = 0$. On obtient ainsi directement $A_{ex} = \frac{A}{2}(1 + a)$ sans avoir à connaître l'épaisseur de la source.

Pour la numération des fissions, la formule, par suite de l'absence de rétrodiffusion, se réduit à

$$F(x) = F(1 - \alpha x),$$

les F ayant une signification évidente et où l'épaisseur effective α est tirée de la pente $(\alpha + b)$ obtenue lors de la numération des particules α émises par la même couche.

Les valeurs de $x(E)$ et de $P(x)$ sont tabulées par ailleurs [12].

Dans le travail cité nous avons montré que la relation (III) est bien vérifiée expérimentalement quant à sa forme; par contre il nous a été impossible de déterminer expérimentalement les constantes a et b; les valeurs adoptées ici sont celles qui découlent des calculs de Crawford.

Nous verrons, lors de la discussion, que nos résultats ne sont que peu affectés par une erreur, même relativement importante (50 pour 100 par exemple) sur les valeurs de ces constantes.

5. **Première détermination de** $\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U}$ (1951). — La source de plutonium avait une intensité voisine

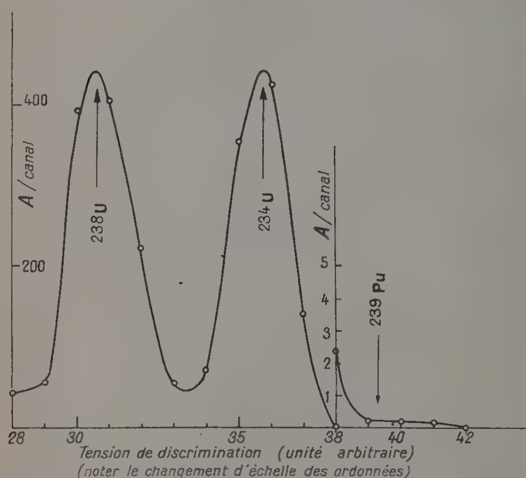


Fig. 3.

de 160 000 α.mn^{-1} dans 2π; son épaisseur effective α était voisine de 0,8 mm air équivalent et son diamètre de 5 cm.

La source d'uranium, d'intensité voisine de 460 α.mn^{-1} dans 2π avait une épaisseur effective voisine de 0,4 mm air équivalent et un diamètre de 5 cm.

A. Numération des α. — La valeur de A_{Pu} obtenue par la méthode indiquée, après correction des pertes dues au temps mort (5), est égale à

$$A_{Pu} = 2.(165\,150 \pm 1\,200)\ \alpha.\text{mn}^{-1}.$$

La faible quantité d'uranium contenue dans le dépôt de plutonium (cf. *infra*) n'introduit sur cette valeur qu'une correction absolument négligeable.

La valeur de A_U obtenue par la même méthode est égale à

$$A_U = 2.(461,8 \pm 1,6)\ \alpha.\text{mn}^{-1}.$$

(5) Le temps mort du discriminateur, rendu supérieur à celui de l'appareil de numération, était égal à $10,5 \pm 0,5$ µs.

On peut négliger toute erreur due au temps de résolution de l'appareillage.

L'étude de la région des raies (*fig.* 3) montre qu'on peut aussi négliger toute pollution de la source d'uranium par du plutonium qui aurait pu s'y déposer lors des diverses manipulations.

B. Numération des fissions. — *a. Corrections d'épaisseur.* — Comme pour la numération des particules α il faut tenir compte des effets des épaisseurs de source; par contre, on peut négliger l'effet de la rétrodiffusion.

Une première expérience sans source dans la chambre placée dans le faisceau de neutrons indique l'énergie au delà de laquelle aucune impulsion (due à une pollution de la chambre, à des protons de recul, etc.) n'est enregistrée. Par ailleurs, au cours de l'étude des particules α, on a déterminé, particulièrement pour les sources intenses de plutonium, l'énergie à partir de laquelle aucune impulsion (particules α ou « empilements ») n'est enregistrée. On peut alors fixer pour chaque couche l'énergie E à laquelle se fera le comptage des fissions. On détermine enfin pour cette énergie l'*efficacité* $1 - \alpha x(E)$ du comptage, α étant l'épaisseur effective obtenue lors de la numération des particules α et $x(E)$ étant calculé à partir d'une relation énergie-parcours pour des fragments de fission supposés répartis en deux groupes ayant chacun une énergie et un parcours unique [15].

On peut alors écrire :

$$\frac{F_{Pu}}{F_U} = \left(\frac{F_{Pu}}{F_U}\right)_{exp} \frac{[1 - \alpha x(E)]_U}{[1 - \alpha x(E)]_{Pu}},$$

où $\left(\frac{F_{Pu}}{F_U}\right)_{exp}$ est la valeur expérimentale brute.

Dans l'expérience décrite ici on a adopté

$$E_U = 13,1 \text{ MeV} \qquad \text{et} \qquad E_{Pu} = 14,85 \text{ MeV},$$

valeurs pour lesquelles le rapport des efficacités est égal à $1,020 \pm 0,013$.

b. Valeur de $\frac{F_{Pu}}{F_U}$. — La chambre est placée dans le faisceau de neutrons; on effectue une première mesure de $\left(\frac{F_{Pu}}{U}\right)_{exp}$ l'uranium étant traversé le premier par les neutrons, on retourne ensuite la chambre, le plutonium étant maintenant le premier traversé. La moyenne des deux résultats est ainsi automatiquement corrigée de l'absorption des neutrons par les matériaux placés entre les deux couches fissiles.

Les taux de comptage en fissions étaient de l'ordre de 300 mn^{-1}. L'expérience préliminaire sans source indiquait que le mouvement propre aux tensions de discrimination adoptées était négligeable : moins de 0,2 mn^{-1}.

On a ainsi obtenu comme valeurs expérimentales brutes :

1° 0,7881 ± 0,60 pour 100 le plutonium étant en avant;

2° 0,7787 ± 0,55 pour 100 l'uranium étant en avant;

3° 0,7832 ± 0,45 pour 100 comme valeur moyenne.

Après avoir appliqué la correction due aux efficacités (6) on obtient $\frac{F_{Pu}}{F_U} = 0{,}799 \pm 0{,}012$, l'erreur indiquée n'étant due qu'aux erreurs statistiques de numération. La présence de 3,1 ± 1,2 μg d'uranium dosé chimiquement dans le plutonium introduit une correction de 0,64 ± 0,2 pour 100 et conduit à la valeur

$$\frac{F_{Pu}}{F_U} = 0{,}794 \pm 0{,}013.$$

c. Valeur de $\frac{F_{Pu}}{F_U}\,\frac{A_U}{A_{Pu}}$. — C'est là la seule expression mesurée au cours de ce travail; des résultats précédents on tire

$$\frac{F_{Pu}}{F_U}\,\frac{A_U}{A_{Pu}} = (222{,}0 \pm 4{,}0).10^{-3}.$$

On reportera le calcul de la valeur de $\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U}$ après les résultats de la deuxième expérience.

6. **Deuxième détermination (juin 1952).** — A. L'introduction d'un détecteur de cuivre (*fig.* 4), dont la mesure de l'activation permet la comparaison des flux de neutrons, modifie légèrement la formule (I); elle s'écrit maintenant :

$$\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U} = \frac{\dfrac{F_{Pu}}{D_{Pu}}}{\dfrac{F_U}{D_U}}\,\frac{A_U}{A_{Pu}}\,\frac{\mathcal{N}_{Pu}}{\mathcal{N}_U} = \frac{G_U}{G_{Pu}}\,\frac{\mathcal{N}_{Pu}}{\mathcal{N}_U},$$

où $G = \frac{DA}{F}$. F et A sont respectivement les nombres, corrigés de l'autoabsorption et de la rétrodiffusion, de fissions et de particules α par minute; D représente, en unités arbitraires, le rapport de l'activité du détecteur de cuivre à celle d'un étalon d'oxyde d'uranium, les mesures étant faites à l'aide d'un compteur Geiger-Müller.

Les expositions au faisceau de neutrons ont toutes duré exactement 80 mn et l'activité du détecteur était toujours mesurée 12 h après l'exposition correspondante.

Le détecteur n'était mis en place qu'au moment précis où, après stabilisation de la pile, on commençait le comptage des fissions; la fin de l'exposition était définie à 1 s près par l'arrêt de la pile à l'aide des barres de sécurité.

Pendant l'irradiation le nombre de fissions était enregistré toutes les 10 mn et servait ainsi de moniteur de flux; les très faibles variations de flux observées (voisines de 2 pour 100) pendant la durée de l'irradiation (durée petite devant la période de l'activité produite) n'ont jamais introduit de corrections supérieures au pour 1000.

Il faut enfin noter que l'activité du détecteur de cuivre lors de sa mesure a toujours été la même, à quelques pour-cent près et qu'il était donc inutile de se préoccuper des pertes de comptage dues au temps mort du compteur; ces pertes étaient d'ailleurs très faibles (de l'ordre de 1 pour 100).

Un générateur d'impulsions étalonné avec précision nous a permis des contrôles fréquents de

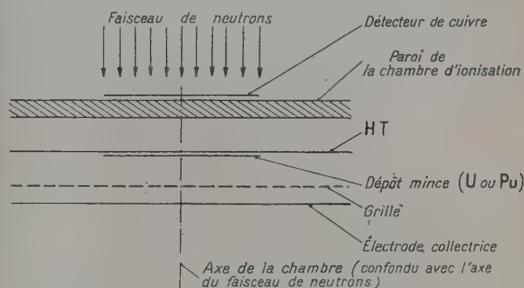


Fig. 4.

l'électronique; de plus nous avons étudié très soigneusement, dans le cas des particules α du plutonium, le spectre des impulsions d'énergies comprises entre 5 et 15 MeV dues à l'émission de trois ou quatre particules α dans un temps suffisamment court pour ne donner naissance qu'à une seule impulsion (empilements) (*cf.* Annexe).

Nous avons également, avant chaque expérience, mesuré le mouvement propre de la chambre (avec et sans faisceau) en l'absence de couche émissive; avec les constantes de temps utilisées (dérivation : 10^{-6} s, intégration : 10^{-6} s) aucune impulsion n'était observée à l'énergie commune de discrimination de 13,5 MeV à laquelle ont été effectuées les numérations de fission.

Les corrections de self absorption et de rétrodiffusion ont été effectuées comme précédemment [12] (les épaisseurs effectives étaient voisines de 0,4 mm air équivalent).

Pour plus de sécurité, la reproductibilité des conditions d'irradiation et la mesure relative des flux ont été contrôlées en encadrant une mesure de fission de ^{239}Pu par deux mesures de fission de l'uranium.

Le tableau I présente l'ensemble des résultats.

(6) Nous avons vérifié, par l'étude des fragments de fission quittant le dépôt avec des énergies comprises entre 7 et 15 MeV que l'efficacité est assez bien représentée par une expression du type $1 - \alpha x(E)$, α ayant, aux erreurs expérimentales près, la même valeur que celle déduite de l'étude des particules α émises par la même couche.

TABLEAU I.

Uranium. — Première expérience (13-16 juin 1952).

$A_{U_1} = 2.(470,3 \pm 1,6)\ \alpha.mn^{-1}$
$F_{U_1} = (881,4 \pm 4,0)\ f.mn^{-1}$
$D_{U_1} = 21,25 \pm 0,07$

$G_{U_1} = \frac{A_{U_1} D_{U_1}}{F_{U_1}} = 2.(11,34 \pm 0,07)$

Plutonium. — (19-21 juin 1952).

$A_{Pu} = 2.(274\,000 \pm 1\,250)\ \alpha.mn^{-1}$
$F_{Pu} = (1\,161 \pm 5)\ f.mn^{-1}$
$D_{Pu} = 20,97 \pm 0,08$

$G_{Pu} = \frac{A_{Pu} D_{Pu}}{F_{Pu}} = 2.(4\,952 \pm 40)$

Uranium. — Deuxième expérience (26-27 juin 1952).

$A_{U_2} = 2.(457,6 \pm 3,0)\ \alpha.mn^{-1}$
$F_{U_2} = (826,9 \pm 3,6)\ f.mn^{-1}$
$D_{U_2} = 20,80 \pm 0,09$

$G_{U_2} = 2.(11,50 \pm 0,10)$

Moyenne pondérée de G_{U_1} et G_{U_2} :

$G_U = 2.(11,41 \pm 0,06)$.

L'écart de G_{U1} et G_{U2} peut s'expliquer par les seules erreurs de mesure; nous avons cependant estimé qu'il était préférable d'introduire dans le calcul de la précision une erreur supplémentaire de 0,6 pour 100 pour tenir compte d'un défaut possible de la reproductibilité géométrique de la position de la chambre dans le faisceau.

B. *Valeur de* $\frac{F_{Pu}}{F_U} \frac{A_{Pu}}{A_U}$. — Après correction de $1,25 \pm 0,5$ pour 100 due à la présence de 10 μg d'uranium dans le dépôt de plutonium (*cf.* § 7) on parvient à $\left(\frac{G_U}{G_{Pu}}\right) = (2,276 \pm 0,030).10^{-3}$, à comparer à $(2,220 \pm 0,040).10^{-3}$ obtenu lors de la première détermination (1951).

7. Valeur de $\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U}$. **Précision.** — A. Les deux mesures ayant été faites avec des faisceaux de neutrons de même composition spectrale, la grandeur mesurée dans les deux cas est la même et sa valeur, moyenne pondérée des deux résultats précédents, est égale à

$$\frac{F_{Pu}}{F_U} \frac{A_U}{A_{Pu}} = (2,253 \pm 0,025).$$

Il suffit, pour obtenir la valeur de $\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U}$ d'appliquer la formule (II) en adoptant comme activités spécifiques :

$2 \times 751\ \alpha.mn^{-1}.mg^{-1}$ d'uranium ordinaire à 0,1 pour 100 près [4];

$2 \times 68\,030\ \alpha.mn^{-1}.\mu g^{-1}$ de ^{239}Pu à 0,4 pour 100 près [5]

(ces valeurs ayant été obtenues par numération des particules α dans des chambres d'ionisation à géométrie 2π après correction de la rétrodiffusion). On en tire comme valeurs des activités par atome-gramme :

$$\mathcal{N}_U = 2 \times 751.10^3 \times 238,1\ \alpha.mn^{-1},$$
$$\mathcal{N}_{Pu} = 2 \times 68\,030.10^6 \times 239,1\ \alpha.mn^{-1}$$

et enfin, compte tenu des erreurs sur les $\mathcal{N}$:

$$\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U} = 204,9 \pm 2,5$$

il s'agit là de la valeur du rapport des sections efficaces moyennes de fission dans un certain flux de neutrons; elle n'a pas a priori *de signification intrinsèque.*

B. DISCUSSION DE LA PRÉCISION DU RÉSULTAT. — Nous n'avons pas tenu compte, dans l'erreur indiquée plus haut, de certaines erreurs systématiques qui peuvent provenir :

a. d'une interprétation incorrecte des phénomènes d'auto-absorption des particules α et des fragments de fission et de *rétrodiffusion.*

L'expression $\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U}$ est proportionnelle au rapport des quantités $\left(\frac{F_{Pu}}{F_U}\right)$ et $\left(\frac{A_{Pu}}{A_U}\right)$.

La numération des fragments de fission ayant été effectuée à des énergies de discrimination très voisines ou égales pour l'uranium et le plutonium et le support (platine) étant le même pour les deux dépôt, son peut négliger toutes erreurs liées aux hypothèses faites sur la rétrodiffusion des fragments de fission.

Par ailleurs, on peut exclure une erreur systématique d'un facteur deux sur les corrections d'auto-absorption, c'est-à-dire une erreur supérieure à 1 pour 100 sur le terme correctif. Cependant, dans le cas de la première expérience à l'aide de la chambre double dont la linéarité en énergie était moins bonne que celle de la chambre à grille, nous avons admis une erreur de 1,4 pour 100.

Quant au rapport $\frac{A_U}{A_{Pu}}$, bien que la rétrodiffusion soit légèrement différente (différence des termes correctifs sur l'extrapolation à $x = 0$: 0,4 pour 100) et que la valeur absolue de la rétrodiffusion soit mal connue, on peut certainement admettre que l'erreur systématique due à la rétrodiffusion est inférieure à 0,2 pour 100.

Les corrections d'autoabsorption sur A_{Pu} et A_u ont été étudiées beaucoup plus en détail [12] que dans le cas des fissions et elles n'introduisent sur le rapport qu'une erreur systématique de l'ordre de 0,5 pour 100.

Si l'on tient compte de la non-indépendance des corrections d'autoabsorption des particules α et des fragments de fission, on voit que l'erreur systématique globale sur l'expression $\left(\frac{F_{Pu}}{F_U}\right)\left(\frac{A_{Pu}}{A_U}\right)$ est certainement inférieure à 1 pour 100. Nous adopterons néanmoins 1 pour 100 comme valeur de cette erreur.

b. d'une *pollution de l'uranium par du plutonium* : l'analyse des énergies des particules α émises par les couches utilisées montre l'absence totale d'une telle pollution;

c. d'une *pollution du plutonium par de l'uranium* : deux expériences préliminaires avaient conduit à

des valeurs de $\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U}$ très différentes l'une de l'autre; des analyses chimiques effectuées par les soins de M. Huré, du Service de Chimie appliquée du C.E.A., avaient révélé la présence de quantités très importantes d'uranium (plusieurs dizaines de microgrammes pour quelques microgrammes de plutonium) difficiles à doser avec précision.

Pour les expériences décrites dans ce travail, M. Huré a procédé à un dosage chimique préalable d'uranium dans les solutions de nitrate de plutonium à partir desquelles ont été préparés les dépôts, les résultats de ces dosages ont été indiqués ci-dessus.

d. la *non-homogénéité du dépôt de plutonium.* On a vu qu'une variation d'un facteur deux de l'activité α d'un point à l'autre du dépôt de plutonium ne conduisait qu'à une erreur inférieure à 7.10^{-3} sur la valeur de $\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U}$. Cette variation ne dépassant pas 30 pour 100 pour le dépôt utilisé pour la mesure de $\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U}$, l'erreur ainsi introduite est inférieure à 0,25 pour 100.

e. de l'*utilisation des relations énergie-parcours dans l'air* pour le calcul des fonctions $x(E)$:

— particules α : l'erreur introduite est inférieure à $1,5.10^{-3}$ [12];

— fragments de fission : l'erreur introduite est négligeable par suite de la quasi-égalité des énergies de discrimination des fragments de fission de l'uranium et du plutonium;

f. d'*impulsions parasites d'origine électrique.* On les a éliminées par un antiparasitage particulièrement soigné et des contrôles constants des conditions de fonctionnement. De plus les expériences ont été effectuées de préférence la nuit;

g. de la précision peut-être surestimée des valeurs publiées des activités spécifiques des deux émetteurs : nous l'avons arbitrairement prise égale à 0,5 pour 100 pour chacun d'eux.

C. Valeur adoptée. — Compte tenu de la discussion précédente on voit que l'erreur sur $\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U}$ est au total inférieure à 2 pour 100 et l'on peut adopter $\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U} = 204,9 \pm 4$ comme valeur du rapport des sections efficaces moyennes de fission dans le flux de neutrons sortant d'un canal radial complètement débouché de la pile à eau lourde de Châtillon.

Si l'on tient compte des rapports de cadmium mesurés avec le même faisceau (*cf.* § 8), on obtient comme valeur du rapport des sections efficaces moyennes de fission par les « neutrons thermiques » ($E < 0,5$ eV) du faisceau utilisé

$$\boxed{\left(\frac{\sigma_{Pu}}{\sigma_U}\right)_{\text{thermique}} = 205,7 \pm 4,0.}$$

8. **Signification de la valeur ainsi déterminée.** — Il faut tout d'abord rappeler que le rapport mesuré ici est celui des sections efficaces *moyennes* de fission dans un certain flux de neutrons, dont le spectre énergétique est peu connu [16]; il n'a pas *a priori* de signification intrinsèque.

Il en aurait une si, par exemple, les deux sections efficaces de fission variaient en $\frac{1}{v}$; dans ce cas le rapport mesuré serait le rapport des sections efficaces pour n'importe quelle énergie de neutrons thermiques.

Mais il semble bien, si l'on se reporte aux valeurs « déclasssifiées » ([7]) par les autorités atomiques du Royaume Uni, des U.S.A. et du Canada [17] qu'il n'en est pas ainsi :

La section efficace de l'uranium naturel est indiquée comme étant égale à 3,92 b pour des neutrons de 2 200 ms^{-1}; celle du plutonium, 664 b, est donnée pour un spectre quasimaxwellien de vitesse la plus probable 2 200 ms^{-1}. Si l'on admet que σ_{Pu} suit la loi en $\frac{1}{v}$, il en résulte [18] que

$$\sigma_{Pu}(2\,200\,\text{ms}^{-1}) = 664 \times \frac{2}{\sqrt{\pi}} = 748\,b\,;$$

de plus si l'on admet que σ_U suit aussi la loi en $\frac{1}{v}$, il résulterait du présent travail que

$$\sigma_{Pu}(2\,200\,\text{ms}^{-1}) = 3,92 \times 205,7 = 806 \pm 16\,b,$$

valeur supérieure d'environ 8 % ([8]) à la précédente. Bien qu'aucune indication de précision ne soit jointe à cette dernière, les deux résultats semblent difficilement compatibles.

Il faut donc abandonner au moins l'une des deux hypothèses sur les lois de variations de sections efficaces de fission.

Il est difficile d'en dire plus; cependant deux renseignements supplémentaires sont disponibles, mais ne permettent pas de conclure.

a. Une courbe récemment publiée [19] de la section efficace totale de l'uranium dans la région thermique montre une petite bosse au voisinage de 0,2 eV.

b. En même temps que les expériences décrites plus haut, les rapports de cadmium ont été mesurés dans la même géométrie pour la fission de l'uranium naturel et pour celle de ^{239}Pu; les valeurs obtenues 73 ± 4 pour l'uranium et 101 ± 7 pour ^{239}Pu ne permettent pas de conclure par suite de la présence de quelques pour-cent de neutrons rapides ($E > 1,0$ MeV) dans le faisceau [20]. Un calcul très grossier montre que, dans l'uranium, les fissions

([7]) Nous ne tiendrons compte ici que de la plus récente des déclassifications [17].

([8]) Dans la publication [2] nous avions évalué la divergence à 20 % en oubliant de tenir compte du facteur $\frac{2}{\sqrt{\pi}}$.

épicadmiques de ^{235}U et rapides de ^{238}U doivent être d'importances voisines.

Nous tenons à remercier M. Berthelot, Chef du Service de Physique nucléaire, qui est à l'origine de ce travail et nous a constamment aidé de ses conseils.

Nous tenons également à exprimer notre reconnaissance à tous ceux qui nous ont facilité la réalisation de ces expériences et en particulier MM. Chaminade, Erisson, Naggiar et Prugne, du Service de Physique nucléaire, le Service de conduite de la Pile de Châtillon, et les Services de Chimie qui nous ont fourni et dosé les solutions de plutonium utilisées.

ANNEXE.

Empilements d'α. — Lorsqu'une source radioactive α de très grande activité spécifique est placée dans une chambre d'ionisation, il est courant d'observer des impulsions dues à l'enregistrement quasi-simultané de plusieurs particules α. Le nombre et le spectre d'amplitude de ces impulsions dépendent de l'activité spécifique et de la durée des impulsions.

La figure 5 montre le spectre obtenu pour une source de plutonium émettant environ 270 000 $\alpha.mn^{-1}$ dans une chambre d'ionisation à grille fonctionnant avec une bande passante définie par $CR = RC = 10^{-6}$ s (valeur donnée par le constructeur et garantie à 10 pour 100 près).

On observe nettement en plus du plateau correspondant à l'enregistrement d'une seule particule α les deux zones d'empilement correspondant à l'enregistrement simultané de deux et de trois particules.

La courbe en pointillé est une courbe calculée point par point en admettant que le temps de montée de l'impulsion est négligeable devant RC et en tenant compte de la forme exacte de l'impulsion après passage dans les circuits RC et CR supposés tels que $RC = CR$. Dans les coordonnées logarithmiques utilisées, sa forme est indépendante de la valeur commune de CR et RC; on peut voir que la forme est exactement celle que donne l'expérience et la coïncidence des deux courbes est obtenue pour $CR = RC = 1,10 \pm 0,05\ \mu s$; par ailleurs l'impulsion a une durée calculée voisine de $0,10\ \mu s$ et non nulle comme nous l'avons supposée ce qui

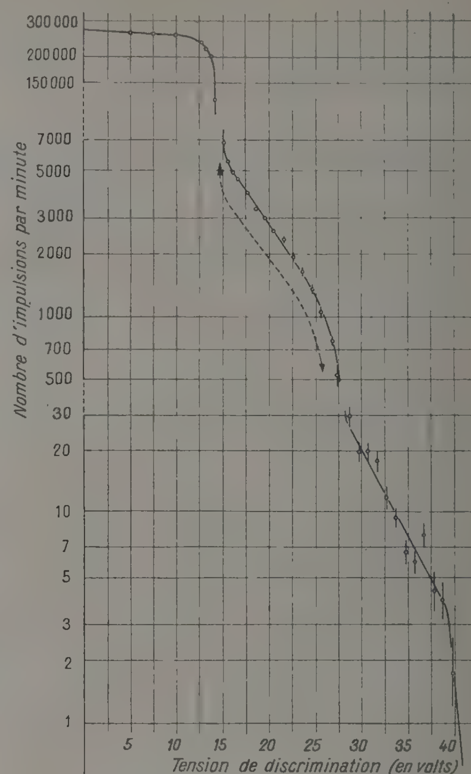


Fig. 5. — Courbe de discrimination des impulsions dues aux particules α émises par une source de 4 μg de ^{239}Pu, déposée sur l'électrode haute tension d'une chambre à grille ($RC = CR = 10^{-6}$ s).

ramène la valeur calculée d'après les empilements à $1,0 \pm 0,1\ \mu$ s, valeur même indiquée par le constructeur.

Manuscrit reçu le 5 septembre 1953.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Cohen R., Cotton E. et Lévêque A. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 2355.
[2] Cohen R., Cotton E. et Lévêque A. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **235**, 159.
[3] Transuranium elements. *N. N. E. S.*, IV, **14** B, part. I, paper 1-2, p. 5.
[4] Kienberger C. A. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1561.
[5] The transuranium elements. *N. N. E. S.*, IV, **14** B, part II, paper 22-80, p. 1717.
[6] Wahl R. — *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 67 A.
[7] Prugne P. et Lechauguette G. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 563.
[8] Sherr R. et Peterson R. — *Rev. Sc. Instr.*, 1947, **18**, 567.
[9] Valladas G. et Lévêque A. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 521.
[10] Colli L. et Facchini U. — *Rev. Sc. Instr.*, 1952, **23**, 39.
[11] Buneman O., Cranshaw T. E. et Harvey J. A. — *Canadian J. Research*, **27**, A, 191.
[12] Cotton E., Lévêque A. et Cohen R. — *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 109.
[13] Rossi B. B. et Staub H. — Ionization chambers and counters. *N. N. E. S.*, V, **2**, 228.
[14] Crawford J. A. — The Transuranium elements. *N.N.E.S.* IV, **14** B, part II, paper 16-55, p. 1307.
[15] Lassen N. O. — *Dan. Mat. Fys. Med.*, 1949, **25**.
[16] Ertaud A. et Beauge R. — *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 580.
[17] Autorités de l'Énergie atomique du Canada, du Royaume Uni et des États-Unis. *Atomics G. B.*, 1952, **3**, 156. Uni et des États-Unis. *Atomics G. B.*, 1951, **2**, 15.
[18] Bethe. — *Rev. Mod. Phys.*, 1937, **9**, 60.
[19] Rapport déclassé U. S. A., A.E.C.U., 2.040.
[20] Barloutaud R. — Rapport C. E. A., n° 180.

LE PROBLÈME DE LA NUMÉRATION DES PARTICULES α EN GÉOMÉTRIE 50 pour 100

Par Eugène COTTON, Antoine LÉVÊQUE et René COHEN,
Service de Physique nucléaire du Commissariat
à l'Énergie atomique,
Centre d'Études nucléaires, Gif-sur-Yvette (Seine-et-Oise).

Sommaire. — L'étude du spectre énergétique des particules α sortant d'une couche plane et d'épaisseur faible devant le parcours a montré que l'introduction brutale de la valeur de la masse superficielle du dépôt dans la correction de l'autoabsorption conduit à des résultats incorrects.
On décrit une méthode permettant de déterminer avec précision cette correction.
L'incertitude sur la valeur du terme de correction dû à la rétrodiffusion des particules α par le support de la couche ne permet pas de déterminer les activités absolues α avec une erreur inférieure à 0,5 ou 1 pour 100 suivant les cas.

1. Introduction. Formule de base. — Ayant eu à effectuer des mesures de sections efficaces de fission [1], [2], nous avons été amenés à examiner d'assez près le problème indiqué en titre (¹). Nous avons eu l'occasion de faire un certain nombre de remarques et d'observations; elles pourront être utiles lors d'une étude systématique du problème.

La numération absolue des particules chargées lourdes (protons, particules α, fragments de fission) est pratique courante en Physique nucléaire. On l'effectue fréquemment pour des sources déposées en couches minces sensiblement planes en comptant les particules qui sortent de la couche dans un angle solide 2π (géométrie 2π ou 50 pour 100), et en apportant un certain nombre de corrections au nombre ainsi déterminé.

En effet, on enregistre seulement les particules sortant de la couche avec une énergie supérieure à une valeur E suffisante pour que le bruit de fond ne perturbe pas la mesure; *on ne détecte donc pas les particules quittant la couche avec une énergie inférieure à E ni évidemment celles qui sont totalement absorbées dans la source*; de plus, la diffusion multiple des particules par les atomes constituant le support renvoie dans la direction du détecteur certaines particules émises initialement dans la direction opposée; *cette rétrodiffusion augmente le nombre de particules détectées.*

Le nombre total A de particules émises par la source est relié au nombre $A(E)$ de particules détectées (en géométrie 50 pour 100) avec une énergie supérieure à E par la relation [3] :

$$A(E) = \frac{A}{2}\left[1 - \frac{d}{2(R_0 - R_E)} + P(E)\right], \qquad (1)$$

d étant l'épaisseur de la couche émissive, supposée uniforme;

R_0 le parcours dans la couche des particules monocinétiques d'énergie d'émission E_0;

R_E le parcours dans la couche de particules d'énergie E;

$P(E)$ la correction de rétrodiffusion en valeur relative;

P dépend aussi du nombre atomique Z du support et dans une plus faible mesure de d et de E_0 [3], [4].

Nous reviendrons sur cette formule et ses conditions d'application précise. Mais il convient de noter qu'à notre connaissance aucune vérification directe n'en a été faite. La plupart des auteurs qui ont effectué des comptages absolus [5] (notamment pour déterminer les activités spécifiques et par suite les périodes de différents émetteurs α) se sont contentés de l'appliquer en prenant pour épaisseur de la couche celle qui découlait des mesures de masse et de surface (²) et pour $P(E)$ les valeurs calculées par Crawford [4] ou mesurées par d'autres auteurs (³) [6].

D'autre part, pour obtenir la valeur de l'activité spécifique de l'uranium, Kienberger [7] a déterminé les activités spécifiques non corrigées de l'autoabsorption de couches de masses superficielles décroissantes et extrapolé à la masse superficielle nulle.

Nous exposons dans cet article la vérification et la mise en œuvre de la formule (I); nous indiquons les limites de précision qu'il est actuellement possible d'atteindre dans la numération absolue des particules α émises par une source plane dans une géométrie dite de 50 pour 100 et les moyens que l'on peut envisager pour améliorer cette précision.

(¹) Nous déterminions les masses des matériaux fissiles à partir de mesures d'activité α des échantillons utilisés et des valeurs connues des activités spécifiques α.

(²) Avec les couches très minces utilisées par ces auteurs et une énergie E de l'ordre de 300 keV, la valeur ainsi *calculée* pour le terme $\frac{d}{2(R_0 - R_E)}$ est en général négligeable.

(³) Par comparaison du nombre de particules émises par la même source dans deux détecteurs de géométrie différente dont l'un ($\Omega \ll 2\pi$) n'est pas affecté par la rétrodiffusion, en *supposant toujours l'épaisseur du dépôt négligeable.*

2. **Conditions de validité de la formule** (I). — A. Autoabsorption. — Si nous négligeons momentanément dans cette formule le terme de rétrodiffusion, elle s'écrit :

$$A(E)=\frac{A}{2}\left[1-\frac{d}{2(R_0-R_E)}\right].$$

Cette relation est valable lorsque les conditions ci-dessous sont remplies :

— $d < R_0$;

— $R_E < R_0 - d$;

— toutes les particules sont émises avec la même énergie initiale E_0;

— la couche émettrice a une épaisseur uniforme d;

— la surface de la couche est sensiblement plane (4).

La formule se démontre alors aisément par une simple intégration [3].

Elle peut être généralisée :

a. au cas où les particules sont émises en plusieurs groupes d'énergie $E_1, E_2, \ldots, E_n$, d'intensités relatives $p_1, p_2, \ldots, p_n$ $\left(\sum p_i = 1\right)$. Elle s'écrit alors :

$$A(E)=\frac{A}{2}\left[1-\frac{d}{2}\sum_1^n\frac{p_i}{R_{0i}-R_E}\right];$$

b. au cas où la couche n'est pas uniforme et même lorsque les atomes émetteurs ont pénétré dans le support, à condition que le pouvoir d'arrêt soit sensiblement constant. Dans ce cas, pour un seul groupe de particules, la formule devient

$$A(E)=\frac{A}{2}\left[1-\frac{\alpha}{2(R_0-R_E)}\right],$$

α qui a toujours évidemment les dimensions d'une longueur n'est plus alors une donnée physique immédiate; nous l'appellerons l'*épaisseur effective* de la couche.

Remarquons que la démonstration de la formule est faite en supposant que la dispersion en énergie des particules ayant traversé une couche l de substance de l'ordre de α est négligeable. Cette approximation ne modifie pas sensiblement les résultats.

Emploi d'une représentation graphique simple. — Dans tous les cas la formule peut s'écrire :

$$A(x)=\frac{A}{2}(1-\alpha x), \qquad \text{(II)}$$

en posant

$$x=\frac{1}{2}\sum\frac{p_i}{R_{0i}-R_E}$$

et en négligeant toujours le terme de rétrodiffusion $\left(\text{dans le cas d'un seul groupe } x=\frac{1}{2(R_0-R_E)}\right)$.

(4) C'est-à-dire telle que le rayon de courbure en chaque point soit grand devant le parcours des particules dans le détecteur.

Pour vérifier et utiliser plus aisément cette formule, nous avons tabulé les valeurs de x (5) en fonction de E pour les émetteurs utilisés dans nos mesures (^{239}Pu et uranium naturel). Les valeurs de x sont tabulées à l'annexe I.

Ainsi, en l'absence de rétrodiffusion, *la fonction $A(x)$ est représentée graphiquement par une droite (fig. 1) coupant l'axe des A au point d'ordonnée* $\frac{A}{2}$. Cette valeur, remarquons-le, ne correspond pas à $E = 0$; pour $E = 0$,

$$x=\frac{1}{2R_0} \qquad \text{et} \qquad A(E=0)=\frac{A}{2}\left(1-\frac{\alpha}{2R_0}\right);$$

$\frac{\alpha}{2R_0}$ représente la fraction des particules émises

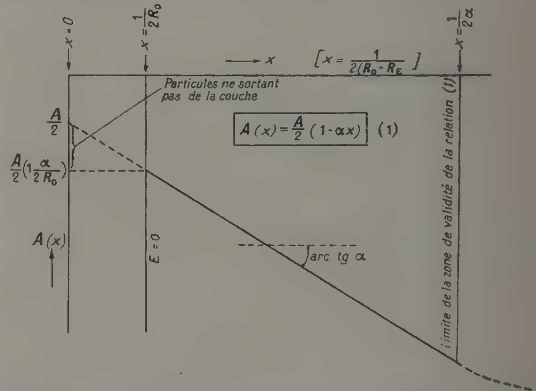


Fig. 1. — Représentation schématique de la courbe de discrimination dans le cas d'un émetteur de particules α de parcours R_0 en l'absence de rétrodiffusion. α est l'épaisseur de la couche émissive.

dans l'angle solide 2π en direction du détecteur mais totalement absorbées dans la couche. La pente de la droite étant égale à α, l'*épaisseur effective est ainsi lue directement sur le graphique.* En fait, nous allons voir que la rétrodiffusion complique les choses.

B. Rétrodiffusion. — La rétrodiffusion des particules α a été longtemps considérée comme négligeable, mais les expériences de numération précise ont montré qu'elle augmentait de plusieurs pour-cent le nombre mesuré en géométrie 2π. La théorie de la diffusion multiple permet d'expliquer ce résultat.

La formule calculée par Crawford [4] pour le terme de rétrodiffusion ne donne, d'après les hypo-

(5) Les valeurs de x ont été calculées en prenant pour R_i et R_E les valeurs des parcours dans l'air d'après la courbe de Bethe [8]. Les épaisseurs effectives sont en conséquence évaluées en air équivalent; comme le rapport des parcours à l'énergie E dans l'air et dans la substance émettrice varie avec E, cette manière de procéder introduit une erreur; la correction n'est cependant pas importante (*cf* Annexe II).

thèses utilisées, qu'une limite inférieure de ce terme. Les expériences [6] auxquelles nous avons fait précédemment allusion, semblent cependant indiquer que l'ordre de grandeur est correct. Nous reviendrons sur ce point plus tard.

Prenant toujours comme variable, au lieu de l'énergie E la grandeur x, nous avons tabulé la fonction $P(x)$ en partant des calculs de Crawford pour une couche mince d'uranium et une couche mince de plutonium ([6]) déposées sur platine (*fig.* 2).

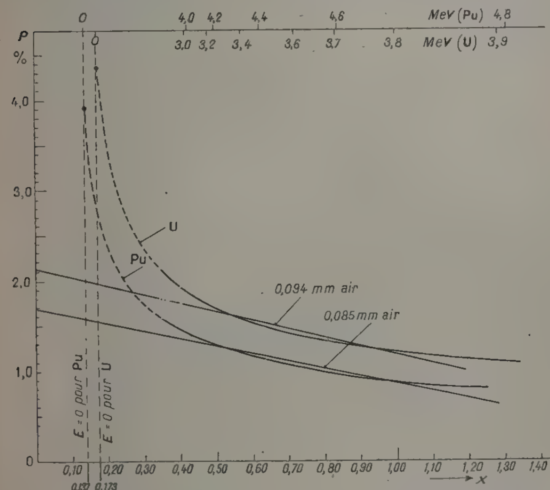


Fig. 2. — Valeurs calculées de la rétrodiffusion en géométrie 2π des particules émises par des couches infiniment minces d'uranium naturel et de ^{239}Pu déposées sur platine épais. (La partie des courbes tracée en pointillés est certainement incorrecte par suite des variations du pouvoir d'arrêt avec l'énergie.)

On voit que la fonction $P(x)$ présente une partie quasi linéaire ([9]) pour :

$0{,}50 < x < 1{,}0$ ($3{,}25 < E < 3{,}8$ MeV) dans le cas de l'uranium;

$0{,}45 < x < 1{,}1$ ($4{,}05 < E < 4{,}75$ MeV) dans le cas du plutonium.

La pente de cette droite correspond à une épaisseur fictive égale à 0,094 mm d'air pour l'uranium et 0,085 mm pour le plutonium; en conséquence la fonction

$$A(x) = \frac{A}{2}[1 - \alpha x + P(x)] \qquad \text{(III)}$$

présentera aussi une partie linéaire dans les mêmes domaines de variation de x; *la pente de la droite est égale à l'épaisseur effective augmentée de l'épaisseur fictive due à la rétrodiffusion.*

([6]) Les calculs de Crawford indiquent que $P(x)$ est indépendant de d si $d \ll R_0$.

([7]) La validité de cette approximation est discutée à l'Annexe III.

Par ailleurs l'*extrapolation à $x = 0$ de cette région linéaire conduit non pas à la valeur $\frac{A}{2}$ mais à $1{,}021\frac{A}{2}$ pour l'uranium et $1{,}017\frac{A}{2}$ pour le plutonium* ([8]).

Remarquons enfin que cette extrapolation n'utilise que des points expérimentaux correspondant à des domaines d'énergie où :

— l'hypothèse $R_E \leq R_0 - d$ est certainement vérifiée si $d \ll R_0$;

— les particules α détectées ont perdu suffisamment peu d'énergie pour que le straggling ne fausse pas l'application de la formule (I);

— l'hypothèse d'un rapport constant des parcours des particules α dans l'air et la substance émettrice est pratiquement vérifiée (*cf.* Annexe II);

— on est assez loin de l'énergie E_0 pour que la largeur expérimentale (électronique, etc.) n'intervienne pas (9).

3. **Vérification expérimentale de la validité de la formule** (III). — A. Dispositif expérimental. — Nous avons utilisé la collection électronique dans une chambre d'ionisation à grille à électrodes planes parallèles, remplie d'un mélange (argon + 1,5 pour 100 CO_2) sous une pression totale de 3 atm (distance entre plan de la source et plan de la grille : 4 cm). La chambre était reliée à un amplificateur proportionnel (modèle C. E.A., 2 Mc) et les impulsions qui en sortaient étaient analysées par un sélecteur d'amplitude à 10 canaux réalisé au C.E.A. [9].

Les sources étaient constituées par des dépôts d'uranium (obtenus par évaporation thermique) sur des feuilles de 50 μ de platine ou de 100 μ d'aluminium. La surface de ces dépôts variait entre 5 et 75 cm², leur masse superficielle entre 0,03 et 0,08 mg/cm² ([10]). Nous avons aussi utilisé des dépôts de ^{239}Pu sur platine (de l'ordre du microgramme par centimètre carré de plutonium).

Il y a, dans les conditions de l'expérience, proportionnalité entre l'énergie E abandonnée dans la chambre par une particule α et l'amplitude V à la sortie de l'amplificateur. Le sélecteur nous permettait d'obtenir le nombre d'impulsions d'amplitude comprise entre V et $V + \Delta V$ (ΔV étant la largeur commune des 10 canaux du sélecteur), d'où le nombre d'impulsions $A(V)$ d'amplitude supérieure à V. L'analyse des raies nous fournissait par ailleurs le coeffi-

([8]) *Cf.* Annexe IV.

([9]) On peut montrer, dans le cas de l'uranium, que pour une raie dont la largeur à mi-hauteur est de 4 pour 100, la courbe en x n'est linéaire que jusqu'à $x \neq 1{,}3$ et jusqu'à $x = 0{,}7$ pour une largeur de 7 pour 100 (en négligeant la rétrodiffusion).

([10]) La masse déterminée par pesée est supérieure d'environ 25 pour 100 à celle que l'on déduit de la numération α. Cette différence semble due à l'oxydation de la couche d'uranium.

cient de proportionnalité entre V et E; on en déduisait simultanément les valeurs de $A(E)$ correspondant à 11 valeurs de E différentes. Par utilisation des courbes donnant x en fonction de E on obtenait les valeurs expérimentales de $A(x)$.

B. Résultats. — La figure 3 reproduit les raies de l'uranium naturel, obtenues avec un dépôt de 0,05 mg/cm² sur une feuille de platine de 50 μ.

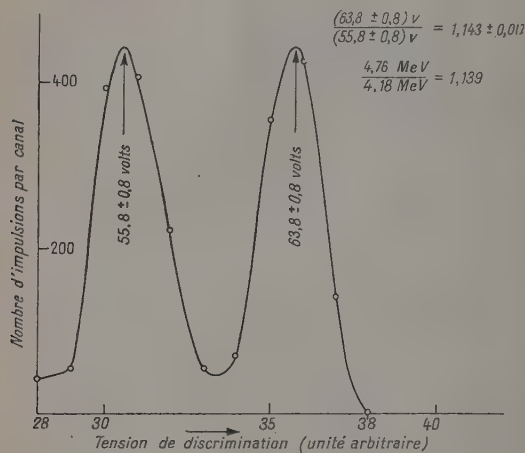


Fig. 3.

L'aspect des courbes et le rapport des amplitudes correspondant aux deux pics $1{,}143 \pm 0{,}017$ (égal à celui des énergies des deux groupes de particules α

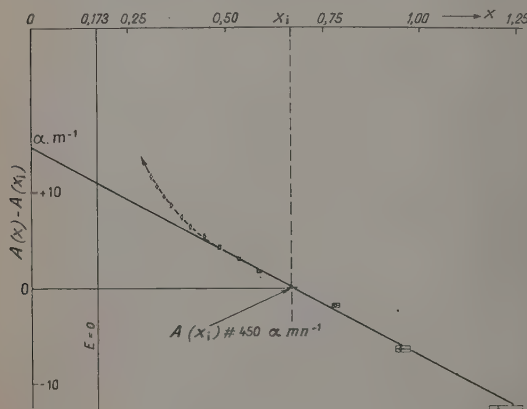


Fig. 4. — Courbe en x observée pour l'uranium déposé sur platine.
Masse superficielle du dépôt : 0,05 mg/cm²; épaisseur effective (déduite de la courbe) : 0,40 mm air équivalent.

émis par l'uranium), nous garantissait du bon fonctionnement de la chambre et permettait l'étalonnage. La figure 4 donne un exemple de courbe en x relative à un dépôt d'uranium sur platine; on voit que *de nombreux points se placent bien*, comme le veut la formule (III), *sur une droite*, dans la région où la courbure de la rétrodiffusion n'intervient pas ($x > 0{,}5$ ou $E > 3{,}25$ MeV). L'erreur statistique reportée est seulement celle qui correspond aux différences $A(x) - A(x_i)$ indiquées directement par les canaux, la valeur de x_i étant choisie arbitrairement. Autrement dit, on n'a pas porté sur cette courbe l'erreur statistique correspondant au total des impulsions enregistrées; elle se traduirait par un déplacement vertical de l'ensemble de la courbe.

La figure 5 montre la courbe $A(x)$ obtenue avec une

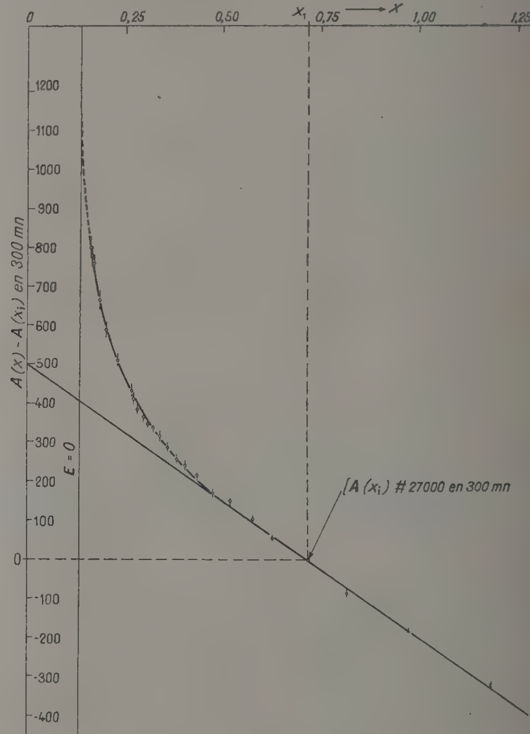


Fig. 5. — Courbe en x pour un dépôt de plutonium sur platine.
Masse superficielle du dépôt : ≤ 10 μg/cm²; épaisseur effective déduite de la courbe : 0,16 mm air équivalent.

source de plutonium (11). La partie linéaire débute maintenant à $x = 0{,}47$ en bon accord avec l'expression calculée de $P(x)$ pour le plutonium (*fig.* 2).

La figure 6 montre la courbe $A(x)$ obtenue avec une source d'uranium déposée cette fois sur un support de 100 μ d'aluminium. On retrouve la

(11) Nous remercions M. Valladas qui a effectué les mesures correspondant à cette courbe à l'aide de son appareillage particulièrement stable et précis et d'une source préparée avec le plus grand soin en utilisant la technique du tétraéthylèneglycol [16].

partie linéaire, la pente est du même ordre que pour les sources (de même masse superficielle) déposées sur platine mais avec une partie courbée indiquant une rétrodiffusion moins importante, ce qui est prévu pour un support de nombre atomique plus faible.

L'ensemble de ces résultats montre que la formule (I) est vérifiée avec une bonne précision à condition de ne pas y introduire une valeur *a priori* de l'épaisseur effective. Il est donc possible d'utiliser dans ces conditions la formule pour déterminer l'intensité de sources α.

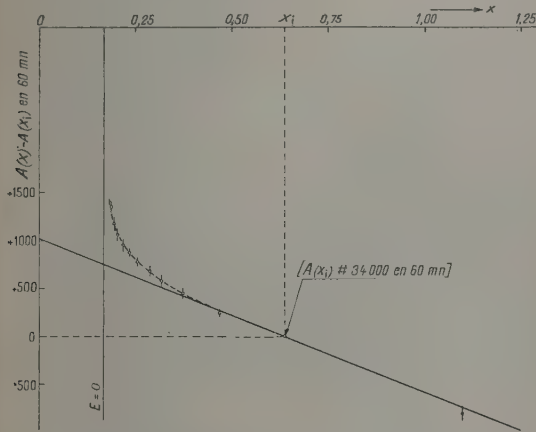


Fig. 6. — Courbe en x pour un dépôt d'uranium sur aluminium.

Masse superficielle du dépôt : 0,04 mg/cm²; épaisseur effective (déduite de cette courbe) : 0,4 mm air équivalent.

4. **Méthode pratique de numération absolue.** — *a.* On place dans une chambre d'ionisation de géométrie 50 pour 100 le support plan du dépôt mince dont on veut mesurer l'activité.

b. On contrôle le bon fonctionnement de l'appareillage et par étude de la région de la (ou des) raie (s), on étalonne en énergie les amplitudes des impulsions (*cf.* Annexe IV).

c. On étudie soigneusement, si possible à l'aide d'un sélecteur multicanaux (si l'intensité de la source est faible), la région correspondant à la variation linéaire de $A(x)$.

d. On convertit l'amplitude des impulsions en énergie puis en x et l'on porte sur un diagramme en x les valeurs $A(x_1)$, $A(x_2)$, ..., $A(x_i)$, ..., $A(x_n)$ des taux de comptage observés à l'aide du sélecteur. L'extrapolation à $x = 0$ donne la valeur de

$$\Delta = A(x=0) - A(x_i),$$

x_i étant choisi arbitrairement.

e. Enfin on fait un comptage très long, destiné à réduire la fluctuation statistique à la tension de discrimination correspondant à x_i : $A_{1\,\text{ng}}(x_i)$.

f. L'activité absolue A est alors donnée par l'expression

$$A = 2\,\frac{A_{1\,\text{ng}}(x_i) + \Delta}{k},$$

où k est le facteur de correction dû à la rétrodiffusion obtenu d'après les calculs de Crawford (par exemple 1,021 pour l'uranium naturel, 1,017 pour ^{239}Pu).

Nous discuterons dans la conclusion la précision avec laquelle est connu le facteur k et l'erreur qui en résulte.

Il faut bien remarquer qu'à aucun moment nous n'avons eu à connaître l'épaisseur effective réelle de la source; sa valeur peut, si on le désire, se déduire immédiatement de pente de la région linéaire $A(x)$ après déduction de la pente fictive due à la rétrodiffusion (0,085 mm air pour le plutonium, 0,094 mm pour l'uranium).

5. **Conclusions.** — I. Les expériences précédentes effectuées avec des sources d'uranium de masses superficielles toutes voisines de 0,05 mg/cm² (déterminées par numération des particules α), c'est-à-dire de 0,15 mm d'air équivalent et de plutonium de masse superficielle beaucoup plus faible ont permis de vérifier que $A(x)$ a bien la *forme* prévue par la théorie, c'est-à-dire linéaire entre $x \simeq 0{,}5$ et $x \simeq 1$ et courbée par la rétrodiffusion entre $x(E = 0)$ et $x \simeq 0{,}5$.

II. Ces expériences ne nous ont pas permis de conclure sur la validité (en valeur absolue) de la formule de Crawford; les effets dus à la rétrodiffusion et à l'autoabsorption, mêlés intimement dans la région quasilinéaire, ne se séparent que dans la partie courbée de $A(x)$ et, pour en tirer des conclusions certaines, il faudrait utiliser un dispositif particulièrement étudié du point de vue bruit de fond.

Des expériences sur ce sujet sont en cours actuellement au Service de Physique nucléaire du Commissariat à l'Energie atomique (12).

Néanmoins nos propres mesures, quoique peu précises aux faibles énergies de discrimination semblent indiquer que la rétrodiffusion expérimentale est supérieure (facteur voisin de 1,5) à celle que l'on déduit des calculs de Crawford au voisinage de l'énergie zéro.

III. Nous avons aussi constaté que l'épaisseur effective est nettement supérieure à celle (13) que l'on déduit de la masse superficielle moyenne des dépôts utilisés; dans le cas de l'uranium pour des épaisseurs calculées de 0,15 mm d'air les épaisseurs effectives sont toujours très supérieures (14). Le rap-

(12) Valladas (à paraître). *Voir* aussi Annexe III.

(13) Nous avons admis que dans le domaine d'énergie utilisé (3 à 4 MeV), 3,7 mg/cm² d'oxyde d'uranium sont équivalents à 1 mg/cm² d'air; nous avons utilisé pour cela la courbe de Rosenblum-Wilcox [10], [11].

(14) Il est intéressant de noter qu'on observe un rapport de l'ordre de 20 entre la masse superficielle obtenue à partir

port est encore plus grand dans le cas des sources de plutonium (15).

IV. L'incertitude sur la valeur de la rétrodiffusion, et surtout le fait que l'épaisseur effective est nettement supérieure à l'épaisseur calculée, peuvent, dans certains cas, rendre tout à fait illusoires des mesures dites à 1 pour 1000 d'activité absolue α en géométrie 50 pour 100. En particulier une telle précision sur des mesures opérées par extrapolation au « bias » zéro, avec corrections calculées (rétrodiffusion et autoabsorption) est sujette à caution. Il n'est pas certain que l'extrapolation à l'épaisseur zéro soit valable, l'épaisseur effective n'étant pas nécessairement proportionnelle à la masse superficielle du dépôt.

On trouve dans la littérature de nombreuses descriptions d'expériences portant sur la rétrodiffusion ainsi que de brèves indications sur des travaux non publiés [6].

En général on mesure une même source en géométrie 2π et en géométrie à petit angle solide très bien défini.

La différence des activités spécifiques observées est évidemment due aux effets de l'autoabsorption et de la rétrodiffusion. Le plus souvent la *masse superficielle moyenne* des dépôts utilisés est négligeable et la différence attribuée à la seule rétrodiffusion. Si, en fait, l'*épaisseur effective* n'est pas négligeable, l'expérience ne donnera qu'une *limite inférieure* du facteur de rétrodiffusion.

V. Par contre, lorsqu'il s'agit de *comparaisons* de sources radioactives α, l'utilisation d'une géométrie 2π qui permet l'utilisation de sources peu intenses, peut donner des résultats précis au moins pour des énergies α du même ordre, à condition d'utiliser une représentation en x et la partie quasi-linéaire de $A(x)$. Les corrections d'épaisseur sont alors effectuées automatiquement; quant à la différence des corrections de rétrodiffusion (3 à 5.10^{-3} dans le cas d'un support à Z élevé, 1 à 3.10^{-3} si Z est faible) elle n'introduit pas d'erreur supérieure à 2.10^{-3}.

VI. Pour la numération absolue d'une source la méthode proposée permet d'atteindre une précision meilleure que 1 pour 100 si le dépôt est effectué sur support à Z élevé et 0,5 pour 100 pour un support à Z faible, ceci sans se préoccuper de la valeur de l'épaisseur du dépôt (la correction d'autoabsorption étant effectuée automatiquement).

On peut espérer atteindre une bien meilleure précision quand nos connaissances sur la rétrodiffusion seront plus précises.

En l'état actuel des choses, il semble bien, comme l'indiquent Fleming, Ghiorso et Cunningham [6], que la méthode la plus précise soit celle qui utilise un angle solide très petit, ce qui élimine les effets d'autoabsorption et de rétrodiffusion; mais il devient alors essentiel de calculer avec précision le facteur géométrique et d'éviter les diffusions introduites par les diaphragmes et les écrans interposés entre la source et le détecteur.

Nous tenons à exprimer notre reconnaissance à M. A. Berthelot, Chef du Service de Physique nucléaire, qui s'est intéressé à ces recherches et en a discuté les résultats avec nous.

Les sources d'uranium ont été préparées par MM. Prugne et Léger; M. Erisson s'est occupé plus spécialement des sources de plutonium et nous a aidé pour les comptages; qu'ils trouvent ici l'expression de toute notre gratitude.

Nous remercions aussi les électroniciens du Service des Constructions électriques, notamment MM. Valladas, Wahl, Guillon et Thénard.

ANNEXE I.

Valeur des fonctions $x(E)$.

Uranium :

$$x(E) = \frac{1}{4}\left(\frac{1}{R_{01} - R_E} + \frac{1}{R_{02} - R_E}\right);$$

$$E_{01} = 4{,}18 \text{ MeV}, \qquad E_{02} = 4{,}76 \text{ MeV};$$

^{239}Pu :

$$x(E) = \frac{1}{2}\left(\frac{1}{R_0 - R_E}\right),$$

$$E_0 = 5{,}15 \text{ MeV}.$$

On a utilisé la relation énergie-parcours des α dans l'air [8].

E.	x_U.	x_{Pu}.	E.	x_U.	x_{Pu}.
0	0,173	0,137	3,85...	1,1211	–
0,40...	0,189	0,147	3,90...	1,2819	0,3915
0,80...	0,202	0,155	3,95...	1,4060	–
1,20...	0,218	0,164	4,00...	1,8429	0,4205
1,60...	0,238	0,175	4,05...	2,4315	0,4370
2,00...	0,266	0,189	4,10...	3,7048	0,4550
2,40...	0,306	0,207	4,15...	9,3280	0,4753
2,80...	0,3693	0,233	4,20...	–	0,4980
2,85...	0,3795	–	4,25...	–	0,5241
2,90...	0,3904	–	4,30...	–	0,5531
3,00...	0,4146	–	4,35...	–	0,5855
3,05...	0,4286	–	4,40...	–	0,6219
3,10...	0,4439	–	4,45...	–	0,6640
3,15...	0,4604	–	4,50...	–	0,7133
3,20...	0,4787	0,270	4,55...	–	0,7704
3,25...	0,4987	–	4,60...	–	0,8389

de $A(x)$ et la masse superficielle correspondant à un dépôt homogène de l'élément émetteur, lorsqu'on interprète, à l'aide d'une représentation en x, les résultats d'autres auteurs relatifs à un dépôt d'uranium sur acier optiquement poli [12].

(15) L'interprétation de ce résultat n'est pas encore totalement éclaircie. On peut envisager, soit la formation de globules microscopiques contenant les atomes actifs (formation mise en évidence par certains auteurs dans l'étude de dépôts minces [13], soit la pénétration des atomes radioactifs dans le support. Dans cette seconde hypothèse la profondeur de pénétration moyenne peut même diminuer dans certains cas lorsque la quantité de substance radioactive augmente [14].

3,30...	0,5206	—	4,65...	—	0,9208
3,35...	0,5452	—	4,70...	—	1,0220
3,40...	0,5718	—	4,75...	—	1,1467
3,45...	0,6020	—	4,80...	—	1,3089
3,50...	0,6360	—	4,85...	—	1,5243
3,55...	0,6753	—	4,90...	—	1,8248
3,60...	0,7193	0,326	4,95...	—	2,2727
3,65...	0,7715	—	5,00...	—	3,030
3,70...	0,8326	—	5,05...	—	4,545
3,75...	0,9056	—	5,10...	—	9,090
3,80...	0,9993	0,3663			

ANNEXE II.

Évaluation de l'approximation faite en utilisant la relation énergie-parcours dans l'air.

Nous avons évalué l'erreur ainsi commise dans le cas des sources déposées sur platine. Pour cela nous avons utilisé la courbe énergie-parcours dans l'or, tirée par Wilcox [11] de ses résultats expérimentaux et de ceux de Rosenblum [10].

Par un procédé analogue à celui que nous avons utilisé pour le tracé des courbes de la figure 7 de l'Annexe IV nous avons pu constater que l'erreur relative commise sur la détermination de A par la méthode indiquée plus haut ne dépasse certainement pas $1,5.10^{-3}$ pour une source d'épaisseur effective de l'ordre de 0,4 mm air équivalent.

Par contre, dans la région de la courbe $A(x)$ courbée par la rétrodiffusion, l'approximation est beaucoup plus mauvaise.

ANNEXE III.

Rétrodiffusion.

1° Le calcul théorique développé par Crawford [4] ne conduit qu'à une limite inférieure $P(0)$ de la probabilité qu'a une particule de parcours R_0 d'être rétrodiffusée (*voir* discussion, p. 1515, *loc. cit.*).

A notre connaissance le calcul complet n'a pas été effectué et nous ne tabulerons ici que cette limite inférieure.

2° La valeur absolue de $P(0)$ est obtenue à partir des résultats expérimentaux de Geiger [15] sur la diffusion des particules α de parcours 5,6 cm.

3° La valeur de $P(0)$ pour des particules α de parcours différents est obtenue en admettant que $P(0)$ varie comme $R_0^{-\frac{1}{2}}$.

4° Le tableau I donne les valeurs de $\dfrac{P\left(\frac{r}{R_0}\right)}{P(0)}$, $P\left(\frac{r}{R_0}\right)$ étant la probabilité qu'a une particule d'être rétrodiffusée et de sortir de la couche émissive après une trajectoire de longueur inférieure à $R_0 - r$ dans la couche. En exprimant les parcours en air équivalent, $P\left(\frac{r}{R_0}\right)$ est la probabilité qu'a une particule d'être rétrodiffusée et d'avoir, après sortie de la couche émissive, un parcours résiduel supérieur à r.

5° Le tableau II donne directement, pour l'uranium naturel et ^{239}Pu, les valeurs de $P(E)$ (fonction de l'énergie résiduelle des particules). La figure 2 donne $P(x)$ pour les deux émetteurs.

6° On voit que, dans le cas du plutonium, on ne pourra déceler un écart entre la forme réelle de la courbe représentant les variations de $P(x)$ et une droite (figurée en pointillés), que si la précision obtenue sur chaque valeur reportée $P(x)$ est inférieure à 5.10^{-4} (dans le domaine $0,45 < x < 1,1$).

En pratique, on peut admettre que $P(x)$ est linéaire dans cette région, la pente de cette droite correspondant à une épaisseur fictive de $0,085 \pm 0,01$ mm d'air équivalent; son extrapolation à $x = 0$ donne $1,7 \pm 0,1$ pour 100.

Pour l'uranium, on peut de même admettre qu'entre $x = 0,50$ et $x = 1,0$, $P(x)$ est linéaire. En fait, nous avons presque toujours dans nos expériences pu observer la légère courbure de $P(x)$. Cependant en pratique si l'on s'impose de faire passer au mieux une droite à travers les points calculés pour $0,50 < x < 1,0$, on parvient à une épaisseur fictive ($0,094 \pm 0,01$ mm d'air équivalent) et à une extrapolation ($2,1 \pm 0,1$ pour 100) bien définies, quelle que soit la manière dont on procède.

Tableau I.

Valeur de $G\left(\frac{r}{R_0}\right) = \dfrac{P\left(\frac{r}{R_0}\right)}{P(0)}$ *pour un émetteur de particules α de parcours R_0 déposé en couche mince sur un support plan de nature arbitraire.*

$P\left(\frac{r}{R_0}\right)$ est la probabilité de sortie du support d'une particule α rétrodiffusée et ayant effectué un parcours inférieur à $R_0 - r$ dans le support.

$G(1-u)$ est donné [4] par l'expression [16] :

$$[G(1-u)]^2 = \frac{1}{u^2}[2(1-u)\log(1-u) + 2u - u^2].$$

$\frac{r}{R_0}$.	$G\left(\frac{r}{R_0}\right)$.	$\frac{r}{R_0}$.	$G\left(\frac{r}{R_0}\right)$.	$\frac{r}{R_0}$.	$G\left(\frac{r}{R_0}\right)$.
0,96...	0,12	0,75...	0,308	0,45...	0,510
0,94...	0,14	0,70...	0,343	0,40...	0,545
0,92...	0,17	0,65...	0,377	0,30...	0,619
0,90...	0,187	0,60...	0,410	0,20...	0,703
0,88...	0,205	0,55...	0,443	0,10...	0,809
0,85...	0,233	0,50...	0,477	0,00...	1,00
0,80...	0,273				

[16] Les notations de Crawford sont un peu différentes; la correspondance des deux notations est immédiate.

TABLEAU II.

Valeurs de $P(E)$ pour une couche infiniment mince déposée sur platine.

Uranium

E.	100 $P(E)$.	E.	100 $P(E)$.	E.	100 $P(E)$.
0......	4,375	3,40...	1,555	3,70...	1,299
3,10...	1,800	3,45...	1,515	3,75...	1,246
3,15...	1,761	3,50...	1,474	3,80...	1,194
3,20...	1,720	3,55...	1,432	3,85...	1,138
3,25...	1,679	3,60...	1,391	3,90...	1,082
3,30...	1,638	3,65...	1,347	3,95...	1,020
3,35...	1,597				

Plutonium.

E.	100 $P(E)$.	E.	100 $P(E)$.	E.	100 $P(E)$.
0......	3,9	4,30...	1,197	4,75...	0,796
3,8....	1,533	4,35...	1,158	4,80...	0,745
3,9....	1,474	4,40...	1,119	4,85...	0,690
4......	1,408	4,45...	1,080	4,90...	0,625
4,05...	1,373	4,50...	1,041	4,95...	0,546
4,10...	1,342	4,55...	1,002	5,00...	0,468
4,15...	1,307	4,60...	0,956	5,05...	0,312
4,20...	1,271	4,65...	0,905	5,10...	0,234
4,25...	1,232	4,70...	0,854		

ANNEXE IV.

Quelques remarques sur un mauvais étalonnage.

Ces remarques s'appliquent essentiellement aux expériences faites avec une chambre double ([17]); le fonctionnement de cette chambre reposant sur la dérivation de l'impulsion électronique c'est-à-dire exigeant une vitesse de collection des électrons très constante, on a observé fréquemment des variations des conditions de fonctionnement dues à des impuretés dans l'argon utilisé. Des expériences effectuées avec une même source à plusieurs jours d'intervalle ont montré que :

— *la courbe $A(x)$ présentait toujours une partie rectiligne* dans un domaine s'étendant d'une limite inférieure voisine de $x = 0{,}50$ à une limite supérieure variable et allant de $x = 0{,}8$ à $x = 1{,}5$ (cas de l'uranium);

— *la pente de la partie rectiligne variait*, le rapport des valeurs extrêmes pouvant atteindre 1,5;

— si les mesures étaient suffisamment longues *les valeurs extrêmes de A ex., obtenues par extrapolation à $x = 0$* différaient entre elles de moins de 6.10^{-3} en valeur relative ([18]).

Ces résultats montrent que, pour certaines des expériences sinon toutes, il n'y avait pas proportionnalité entre l'énergie des particules pénétrant dans la chambre et l'amplitude de l'impulsion recueillie, la relation énergie-amplitude différant d'une expérience à l'autre.

Il est possible, avec une bonne approximation, d'expliquer plus complètement ces observations.

Considérons une source n'émettant qu'un groupe de particules α; nous savons que $A(x)$ est une fonction linéaire dans un domaine d'énergie de l'ordre de 1 MeV immédiatement inférieur à l'énergie E_0; l'examen de la courbe énergie-parcours (dans l'air) montre que dans un tel domaine on peut, avec une erreur partout inférieure à 3 pour 100, écrire :

$$x = \frac{1}{2(R_0 - R_E)} \approx \frac{k}{E_0 - E}.$$

Pour tracer la courbe $A(x)$ on se sert pour l'étalonnage en énergie des amplitudes mesurées V, de la

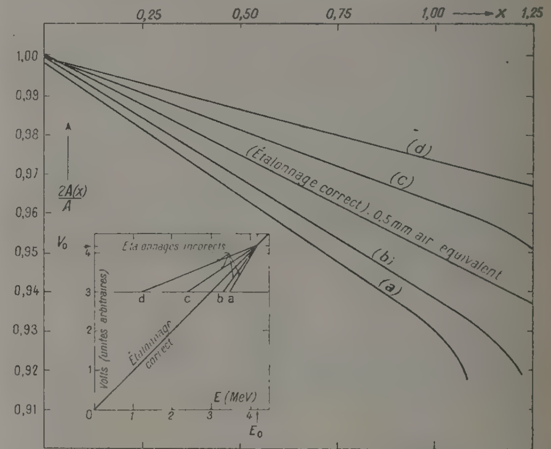


Fig. 7. — Déformations (calculées) de la courbe de discrimination $A(x)$ lorsque l'étalonnage en énergie des amplitudes des impulsions est incorrect; cas de l'uranium naturel.

valeur E_0 d'énergie correspondant à l'amplitude V_0 de la raie observée.

Alors que, dans le cas d'un appareillage et d'un fonctionnement corrects, on a

$$V = \mu E, \qquad \text{avec} \quad \mu = \frac{V_0}{E_0},$$

on aura en cas de mauvais fonctionnement

$$V - V_0 \neq \mu_1(E_0 - E) \quad (^{19}), \qquad \text{d'où} \qquad x = \frac{k\mu_1}{V_0 - V}.$$

Des conditions de fonctionnement imparfait se traduiront seulement par des valeurs μ_1 différentes de μ, c'est-à-dire par des valeurs de x dilatées ou contractées; on comprend ainsi que l'on observe encore une région linéaire de la courbe en x dont la pente varie notablement d'une expérience à l'autre

([17]) Cette chambre est décrite par ailleurs [2].

([18]) Les fluctuations d'origine statistique étaient voisines de 3.10^{-3}.

([19]) Pour des raisons de continuité évidentes, on peut limiter pratiquement dans cet intervalle le développement de cette fonction à son premier terme.

mais dont le prolongement à $x = 0$ passe toujours par le même point.

Dans le cas d'une substance émettant plusieurs groupes de particules α l'approximation précédente n'est plus aussi bonne. Cependant la figure 7 montre, dans le cas de l'uranium, le résultat du calcul des déformations de la courbe en x pour diverses formes supposées d'une relation *incorrecte* amplitude de l'impulsion-énergie de la particule dans la chambre, l'étalonnage étant effectué à partir du pic des α de ^{234}U et l'expérimentateur admettant, à tort, qu'il y a proportionnalité entre amplitude et énergie.

On voit que, dans des limites très larges de mauvais fonctionnement, une région linéaire subsiste et la valeur extrapolée ne diffère pas de la valeur vraie, en valeur relative, de plus de 2.10^{-3}, en bon accord avec nos résultats expérimentaux, ce qui justifie, *a posteriori*, les approximations faites plus haut et ce qui étend le domaine d'application de la méthode de numération.

Manuscrit reçu le 5 septembre 1953.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Cohen R., Cotton E. et Lévêque A. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 2355 et 1952, **235**, 159.
[2] Lévêque A., Cohen R. et Cotton E. — *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 101.
[3] Rossi B. B. et Staub H. H. — Ionization chambers and counters. *N. N. E. S.*, V, **2**, 227, 233 et 240.
[4] Seaborg G., Katz J. et Manning W. — Transuranium elements. *N. N. E. S.*, IV, **14** B, part II, Mc Graw-Hill (1949), article 1655 (Crawford), 1307.
[5] Facchini U. et Gatti E. — *Helv. Phys. Acta*, **23**, 536; *Nuovo Cimento*, **19**, 5, 589.
Seaborg G., Katz J. et Manning W. — Transuranium elements. *N. N. E. S.*, IV, **14** B, part II, articles 19.15, p. 1431, 19.16, p. 1435, 22.60, p. 1675 et 22.80, p. 1717.
[6] Flemming E. H., Ghiorso A. et Cunningham B. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 642; Transuranium elements, *N. N. E. S.*, IV, **14** B, part II, articles 16.4, p. 1197 et 22.80, p. 1717.
[7] Kienberger C. A. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1561.
[8] Bethe H. A. — *Rev. Mod. Phys.*, 1950, **22**, 213.
[9] Wahl R. — *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 67 A.
[10] Rosenblum S. — *Ann. Physique*, 1928, **10**, 408.
[11] Wilcox. — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 1743.
[12] Facchini U., Gatti E. et Germagnoli E. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 475.
[13] Abeles R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 198.
[14] Haissinsky M., Faraggi H., Coche A. et Avignon P.— *J. Physique Rad.*, 1949, **10**, 312.
[15] Geiger H. et Marsden E. — *Proc. Roy. Soc.*, 1909, **82**, 495.
Geiger H. — *Proc. Roy. Soc.*, 1910, **83**, 492.
Geiger H. — *Proc. Roy. Soc.*, 1911, **86**, 235.
[16] Graves A. et Froman D. — Miscellaneous Physical and Chemical Techniques of the Los Alamos Project. *N. N. E. S.*, V, **3**, 8.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM. TOME 15, FÉVRIER 1954, PAGE 117.

CONDITIONS DE FONCTIONNEMENT D'UNE SOURCE D'IONS HAUTE FRÉQUENCE

Par Marc de LACOSTE LAREYMONDIE, Jean SALMON et Joseph WAJSBRUM,
Laboratoire de Physique atomique et moléculaire du Collège de France.

Sommaire. — Les auteurs montrent tout d'abord comment ils ont procédé à la mesure des principales grandeurs qui conditionnent le fonctionnement d'une source débitant 1 mA d'ions hydrogène. Ils donnent ensuite des réseaux de courbes montrant la variation du débit ionique en fonction de ces grandeurs. Ils terminent par des indications sur la focalisation du faisceau et la proportion d'ions atomiques qu'il contient.

1. La réalisation au laboratoire d'un microscope protonique et d'un générateur de neutrons a conduit M. Magnan, Sous-Directeur du laboratoire, a nous demander de préciser les conditions de fonctionnement des sources d'ions haute fréquence utilisées dans ces appareils. Nous nous sommes donnés pour tâche de dégager l'importance relative des différentes grandeurs qui commandent le débit de la source et de tracer des réseaux de courbes donnant la variation de ce débit en fonction des principaux paramètres en jeu. La source étudiée (*fig.* 1) est une source du type Moak, Reese, Good (1). On en trouvera une description détaillée dans l'article de ces auteurs (*voir* bibliographie). Nous avons quelque peu simplifié le montage en supprimant à la fois la bobine magnétique et le disque métallique. Par contre un jet d'air comprimé soufflant d'une part autour de la base et d'autre part le long de la source assure un refroidissement convenable et permet l'utilisation d'une puissance haute fréquence notable. Celle-ci est fournie par un autooscillateur équipé de deux tubes TB 2,5/300 montés en symétrique et fonctionnant sur 96 Mc/s (*voir* schéma, *fig.* 1).

Les résonnateurs d'anode et de cathode sont

(1) Les dimensions du canal d'extraction de la source étudiée sont les suivantes : longueur, 12,5 mm; diamètre, 1,6 mm.

constitués par des lignes distantes de 5 cm et de longueurs respectives 35 et 10 cm. La puissance appliquée aux plaques atteint des valeurs de l'ordre de 700 W tandis que les dérives de fréquence restent

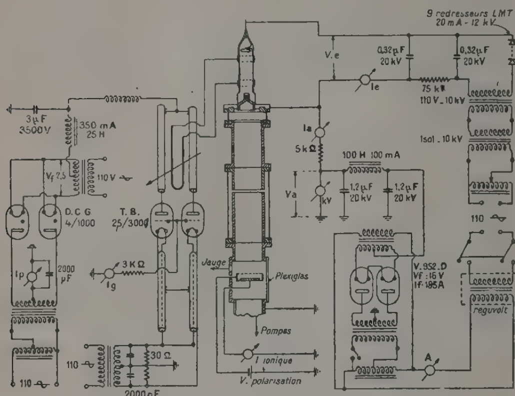


Fig. 1. — Schéma d'alimentation du canon à ions.

inférieures à 0,5 Mc/s malgré les variations de charge très importantes que doivent supporter les lampes. La puissance haute fréquence est injectée entre deux anneaux de laiton de 2,5 cm de largeur entourant la source. La position et l'écartement optimum varient avec les conditions de fonctionnement. Les meilleurs résultats ont été obtenus avec un écartement intérieur des anneaux voisin de 4 cm, le premier de ceux-ci étant placé à environ 3,5 cm de la base. Sa position s'est révélée extrêmement critique du point de vue du débit ionique et doit être ajustée avec soin. Enfin le couplage avec l'émetteur est réalisé au moyen d'une boucle dont l'orientation par rapport aux lignes d'anode est réglable.

Le débit de gaz doit pouvoir être réglé de manière

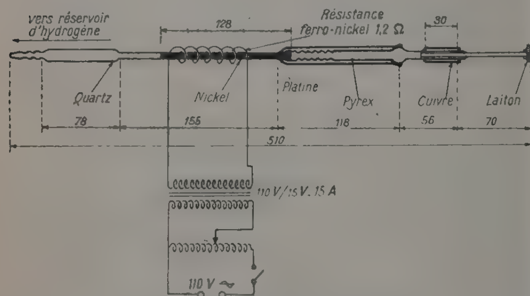


Fig. 2. — Fuite à l'hydrogène et son alimentation électrique.

sensible et doit rester stable. L'osmorégulateur au palladium généralement employé se comporte de façon peu satisfaisante non seulement à cause de sa fragilité mais surtout à cause des instabilités d'écoulement dont les répercussions sur le courant ionique sont très gênantes. Nous utilisons maintenant (*fig.* 2) le nickel sous forme de trois tubes de 2 mm de diamètre de 0,15 mm d'épaisseur et de 12 cm de longueur fermés à une extrémité, soudés à l'autre à un tube de pyrex et placés dans un tube de quartz de 10 mm de diamètre. Une résistance chauffante est enroulée autour du quartz et enrobée dans une pâte réfractaire à base d'amiante fibreuse et de kaolin destinée à assurer un bon isolement thermique. Le réglage est lent mais sensible tandis que la stabilité est bonne. Ce système absorbe une soixantaine de watts lorsqu'il maintient la pression dans la source à sa valeur optimum (²).

On peut évidemment repérer celle-ci à l'aide de la tension aux bornes de la résistance chauffante mais il convient de pouvoir la mesurer en vue d'une étude systématique des conditions de fonctionnement. Dans ce but nous plaçons une jauge de Pirani à l'extrémité d'un tube de verre de 7 cm de longueur et 1 cm de diamètre raccordé à la source derrière la capsule. Afin d'éviter le passage de la décharge entre l'électrode d'extraction et le filament de la jauge nous l'avons convenablement isolée. Nous avons cherché quelles relations existaient entre la pression p dans la source en l'absence de la décharge haute fréquence et la tension de chauffage aux bornes de la résistance V_n et nous avons constaté que p était une fonction exponentielle de V_n.

Nous avons également cherché à connaître la puissance haute fréquence injectée dans la source. La mesure s'est révélée fort délicate. Comme on ignore, en cours de fonctionnement, la valeur de l'impédance aux bornes des anneaux, il conviendrait d'appliquer la formule classique

$$P_t = \frac{UI\cos\varphi}{2},$$

U et I désignant les amplitudes de la tension et du courant et φ le déphasage. Nous avons essayé de

(²) *Note de MM. Jean-Claude* Dumas *et Carlos* Gonzales *au sujet du palladium.* — Le système H-Pd est très complexe. On en résumera ainsi les principales caractéristiques :

Absorption (endothermique). — L'isobare montre que l'on a d'abord formation d'un composé chimique H_2 Pd (phase α), puis lorsque α atteint une certaine concentration, dissolution de H_2 dans ce composé (phase β). On a, alors coexistence des deux phases après quoi parachèvement de α.

Diffusion (exothermique). — Le phénomène est inversé, mais la courbe est hystérésique. Seul l'Hg en dissolution dans β est utilisé. Or la pente $\frac{\Delta D}{\Delta t}$ presque verticale (D, débit du gaz en centimètres cubes par seconde; t, température). rend très difficile l'utilisation de cette portion de courbe. Si l'on considère que les dilations successives produisent un déplacement du cycle hystérésique et que de plus le Pd est particulièrement sensible à certains poisons tels que soufre et phosphore, etc., on voit que son utilisation pour un débit constant d'hydrogène est peu satisfaisante. Le nickel tout en ayant une perméabilité inférieure ne présente pas ces inconvénients et surtout possède un $\frac{\Delta D}{\Delta t}$ beaucoup plus petit.

mesurer U à l'aide d'un voltmètre à lampes. Malgré la faible capacité d'entrée C annoncée par le constructeur $\sim 2\,pF$, l'introduction du voltmètre fait baisser le débit de la source d'environ 50 pour 100; la lecture perd donc toute signification. Nous pouvons par contre nous appuyer sur le fait que le rendement η d'un auto-oscillateur classe C est constant à 10 pour 100 près d'après les données du constructeur des lampes. On déduira la puissance injectée P_i de la puissance appliquée P_a au moyen de la formule

$$P_i = \eta P_a = \eta V_p I_p,$$

V_p désignant la tension continue appliquée aux plaques et I_p la composante continue du courant anodique. D'autre part lorsque la source est en fonctionnement au sommet d'un appareil du type accélérateur ce sont les grandeurs V_p et I_p qui sont les plus commodement accessibles à l'expérimentateur.

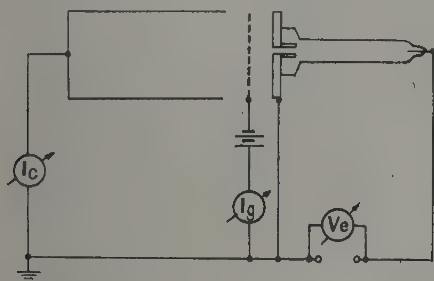


Fig. 3. — Schéma de principe.
Mesure du débit ionique.

Pour effectuer la mesure du débit ionique de façon correcte, il faut éliminer les effets des électrons secondaires. Dans ce but nous recueillons les ions dans un cylindre de Faraday (*fig.* 3) isolé de la base de la source par un manchon de verre porteur d'une grille polarisée. L'électrode d'extraction est à un potentiel qui peut aller jusqu'à 10 kV, le cylindre est relié à la masse d'une part et à la base de la source d'autre part à travers le microampèremètre de mesure. Il suffit de porter la grille à un potentiel négatif d'une cinquantaine de volts par rapport à la masse pour éliminer les électrons secondaires qui prennent naissance tant dans le cylindre que dans le canal d'extraction. Le courant total capté par la grille ne dépasse pas 10 pour 100 du débit ionique.

2. Avant de présenter les différents réseaux de courbes tracés il convient de faire une description qualitative des phénomènes observés. Il va de soi qu'il faut veiller avant toute opération à ce que le vide dans la source soit excellent. Sous l'effet de la haute fréquence, les traces du gaz résiduel se manifestent par une lueur bleue. Lorsque le vide est tout à fait satisfaisant la lueur devient opalescente et l'enveloppe de pyrex luminescente. L'introduction de l'hydrogène amorce la décharge, une lumière rouge est émise par le plasma, dont l'intensité devient plus vive à mesure que la puissance haute fréquence croît. L'application de la tension d'extraction permet d'obtenir un débit d'ions qui croît jusqu'à une certaine valeur de celle-ci puis redescend quelque peu jusqu'au moment où des étincelles apparaissent de manière intermittente au voisinage des électrodes. Le débit est alors instable et la souree risque de devenir inutilisable.

Nous avons noté qu'il faut soigner tout particulièrement la soudure verre-métal de l'électrode d'extraction sans quoi certains endroits du tube capillaire se noircissent sous l'effet d'une oxydation locale et la source est rapidement hors d'usage. La pression indiquée par la jauge de Pirani baisse notablement au moment de l'amorçage de la décharge alors que l'élévation de température qui l'accompagne ferait prévoir un accroissement. Il semble que d'une part la décomposition d'une partie des molécules du gaz modifie le coefficient d'étalonnage de la jauge et que d'autre part des courants haute fréquence induits dans le filament de celle-ci provoquent une variation de la résistance de ce dernier. Enfin le débit d'ions lorsque celui-ci est important a également une influence sur la pression. Aussi avons-nous pris dans les mesures comme valeur de p celle que l'on obtient avant l'amorçage de la décharge.

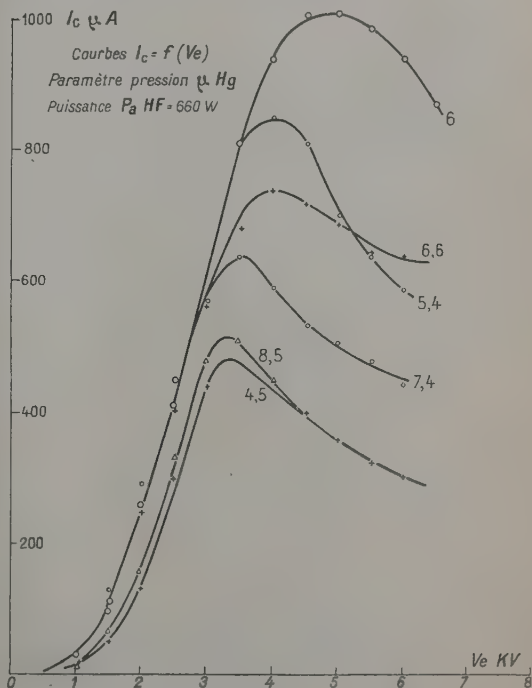


Fig. 4.

Nous avons tracé un ensemble de réseaux montrant comment le débit ionique I_c est lié à la pression p, à la tension d'extraction V_e et à la puissance appliquée aux plaques de l'émetteur P_a, ces trois grandeurs étant celles qui avec la fréquence jouent un rôle important dans le fonctionnement de la source. L'erreur sur la lecture de V_e ne dépasse pas 50 V,

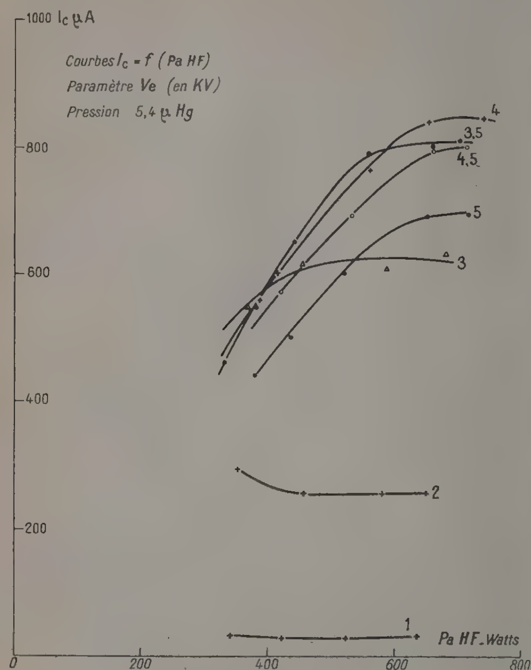


Fig. 5.

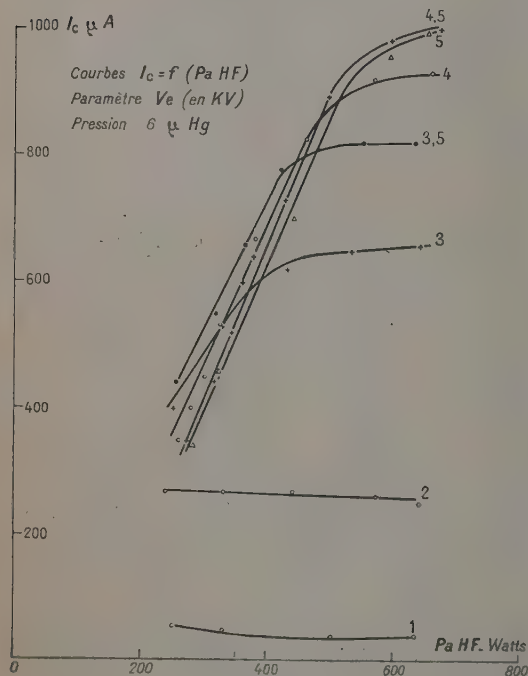


Fig. 6.

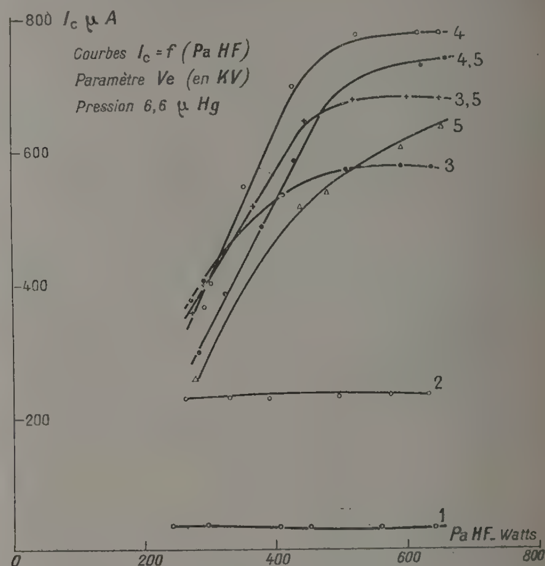


Fig. 7.

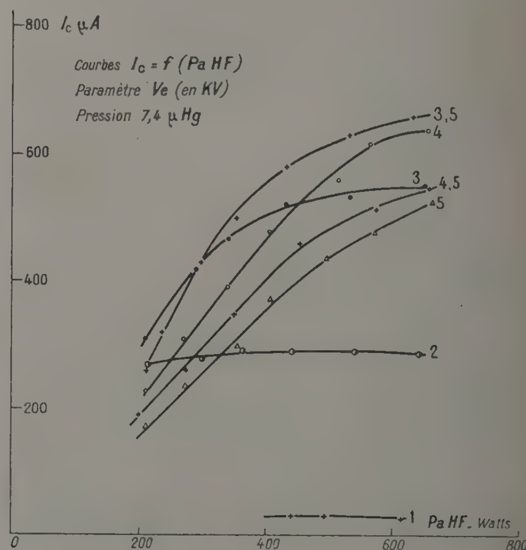


Fig. 8.

la puissance appliquée est donnée à 15 W près et le débit à 5 µA près. Quant à la pression p il est difficile d'éviter tout glissement de sorte que dans quelques cas l'erreur a pu atteindre $0{,}2 \cdot 10^{-3}$ mm Hg. Lorsque les mesures sont assez longues la pression risque de se modifier légèrement.

Or, pour faire une vérification correcte il faut

éteindre la source et attendre que l'équilibre initial soit rétabli. On voit qu'il n'est pas facile de garantir une grande précision dans la mesure.

Nous donnons tout d'abord le réseau $I_c = f(V_e)$ (*fig.* 4) à P_a maximum (660 W) pour les six valeurs suivantes de la pression : 4,5; 5,4; 6; 6,6; 7,4 et $8,5.10^{-3}$ mm Hg. Les courbes partent de l'origine avec une très faible pente et s'incurvent jusqu'à 1,4 kV puis présentent une partie quasi rectiligne le long de laquelle elles restent bien groupées cependant que le débit croît rapidement. Elles se séparent ensuite, passent par un maximum assez plat et retombent régulièrement. Le tracé en est limité à une valeur de 6 kV pour V_e puisque au delà, des décharges parasites s'amorcent au voisinage des électrodes. Le débit maximum d'ions d'hydrogène, soit 1 mA, est obtenu pour une tension de 4,5 kV et une pression de 6.10^{-3} mm Hg. Au-dessus et au-dessous de cette valeur le maximum apparaît pour des valeurs plus faibles de V_e. Avec le deutérium nous avons obtenu un débit maximum de 0,7 mA. Nous noterons enfin que les courbes correspondant aux pressions 4,5 et 8,5 mm Hg présentent par rapport aux autres un léger décalage le long de la zone linéaire. Or, dans ces deux cas il n'avait pas été possible d'obtenir un accord satisfaisant du circuit anodique de l'oscillateur, l'impédance ayant trop varié pour que l'adaptation correcte de la charge puisse être réalisée. Il en résultait sans nul doute une baisse de rendement donc de puissance injectée qui causait cet affaiblissement. Pour les quatre valeurs de la pression 5,4; 6; 6,6 et $7,4.10^{-3}$ mm Hg nous avons tracé d'autres réseaux de courbes (*fig.* 5, 6, 7 et 8). Chacun d'eux représente les fonctions $I_c = f(P_a)$ relatives aux sept valeurs suivantes de la tension d'extraction : 1; 2; 3; 3,5; 4; 4,5, et 5 kV. Les courbes ne peuvent partir de l'origine puisque une puissance P_a minimum de 250 W est nécessaire à l'amorçage de la décharge. Elles sont d'autre part limitées à la puissance maximum appliquée aux lampes soit environ 660 W. Pour les faibles valeurs de la tension d'extraction V_e on obtient des segments de droite horizontaux mais déjà pour 3 kV on voit s'amorcer une montée rectiligne suivie d'une saturation. Au-dessus de 3 kV la zone linéaire s'étend en moyenne de 280 à 500 W. Au delà les courbes s'incurvent à nouveau et le courant ionique devient stationnaire. La saturation peut s'expliquer de la manière suivante. Avec l'application de V_e, l'extrémité de la cathode, le manchon isolant de silice et le plasma environnant forment en quelque sorte une lentille focalisant les ions vers le canal d'extraction.

Le mécanisme de cette focalisation est assez mal connu mais il est certain que pour une valeur donnée de V_e le débit ionique est limité par les propriétés optiques inhérentes à la lentille ainsi formée.

3. Dans toutes ces expériences nous nous préoccupions seulement de capter le faisceau dans le cylindre de Faraday sans prendre garde à sa divergence. En fait il convient de le focaliser si l'on vise une utilisation quelconque. Aussi nous avons construit un canon à protons comprenant deux cylindres de 5 cm de diamètre, de longueurs respectives 5,8 et 12,2 cm et d'écartement 5 mm. En portant le premier de ceux-ci et la base de la source à une tension d'accélération V_a de 13 kV et le second à la masse on obtient sur un écran fluorescent et pour une tension d'extraction de 3 kV une image fine de 1 mm de diamètre située à 48 cm du canal d'extraction et à 23,4 cm du plan médian de la lentille. Nous avons noté que la position de cette image et par conséquent sa dimension ne dépendent que du rapport $\frac{V_e}{V_a + V_e}$. Nous avons déduit des propriétés optiques relatives à ce genre de lentilles que l'énergie de sortie des ions était voisine de celle correspondant à la tension d'extraction V_e. On voit que cette dernière joue à la fois sur le débit et sur la focalisation et que si l'on veut pour différentes intensités faire converger le faisceau toujours au même point il convient d'ajuster en même temps V_a et V_e.

Nous avons enfin mesuré la proportion d'ions atomiques contenue dans le faisceau à l'aide d'un champ magnétique déflecteur. Pour l'hydrogène la proportion de protons atteint 75 % dans une source ayant fonctionné une centaine d'heures. On voit que les sources du type haute fréquence permettent d'obtenir des courants d'ions atomiques tout à fait en rapport avec les besoins de nombreux appareils. Si l'on désire le débit maximum il convient d'ajuster avec soin tous les paramètres à leurs valeurs optimum. Si l'on désire une excellente stabilité avec un débit de 300 à 500 μA, il convient de choisir une tension d'extraction de 2 kV bien régulée, une pression de l'ordre de 6.10^{-3} mm Hg et une puissance haute fréquence importante. On s'affranchit ainsi des variations accidentelles de ces deux dernières grandeurs.

Nous remercions MM. Bertrand, Garchery et Patiou de leur collaboration technique tant dans le domaine de la mécanique que dans celui de l'électronique.

Manuscrit reçu le 10 juillet 1953.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] BAYLY and WARD. — A Positive ion Source. *Canadian J. Research*, 1948, **26**, 69.
[2] THONNEMANN. — The performances of a new Radiofrequency Source. *Proc. Phys. Soc.*, 1948, **61**, 483.
[3] MOAK, REESE et GOOD. — Design and Operation af Radiofrequency Source. *Nucleonics*, septembre 1951.
[4] SWANN and SWINGLE. — A Radiofrequency Ion Source. *Rev. Sc. Instr.*, 1952, **23**.
[5] V. LOMBARD, C. EICHNER et M. ALBERT. — *Bull. Soc. Chim.*, Paris, 1937, **4**, 1276.

LETTRES A LA RÉDACTION

FONCTIONS D'ONDE APPROCHÉES A UN PARAMÈTRE POUR LES ÉTATS 2 S DE He I

Par G. MUNSCHY et P. PLUVINAGE,
Faculté des Sciences de Strasbourg.

La méthode proposée précédemment pour former des fonctions d'onde approchées des atomes à deux électrons [1], [2] et qui avait été appliquée au seul état fondamental, a été étendue aux états $2S$ de HeI. Dans cette première tentative, on s'est borné à envisager des fonctions dépendant d'un seul paramètre. Le principe est toujours celui de la méthode de variation. La famille des fonctions d'essai est

$$\varphi_\pm = [\psi_1(1)\psi_{200}(2) + \varepsilon\psi_{200}(1)\psi_1(2)]\, u_k(r_{12}). \quad (1)$$

Notations :

ψ_1, fonction d'onde de l'état fondamental d'un atome hydrogénoïde de numéro Z;
ψ_{200}, fonction d'onde de l'état $2S$ de ce même atome;
$\varepsilon = +1$ pour le singulet (état 2^1S);
$\varepsilon = -1$ pour le triplet (état 2^3S).
Les coordonnées des deux électrons sont notées 1 et 2, et la distance mutuelle, r_{12};
$u_k(r_{12})$ est la fonction d'onde des états S dans le problème du choc des deux électrons supposés soustraits au champ du noyau. L'énergie du choc est k^2. Le hamiltonien du système est désigné par H.

Le paramètre k est ajusté de façon à rendre minimum

$$E'_\pm(k) = \frac{1}{N[\varphi]}\int \varphi H \varphi \,\mathrm{d}\tau.$$

Pour 2^3S les fonctions antisymétriques φ_- sont orthogonales à la fonction d'onde symétrique de l'état fondamental. E' est sûrement approchée par excès. Pour 2^1S on ne peut rien dire à l'avance de E'_+ et, en général, une famille de fonctions d'essai donne un minimum de E'_+ qui est une mauvaise approximation de l'énergie de l'état fondamental.

Les calculs ont été améliorés par rapport à ceux des publications [1] et [2].

a. φ'_+ est de la forme ψu_k. Soit v_k le carré de u_k. L'expression de E' est

$$E'(k) = -\frac{5}{8}Z^2 + k^2 - \frac{1}{4N}\int \overrightarrow{\nabla\psi^2}.\overrightarrow{\nabla v_k}\,\mathrm{d}\tau.$$

L'intégrale se transforme par une formule de Green

$$E'(k) = -\frac{5}{8}Z^2 + k^2 + \frac{1}{4N}\int \psi^2 \Delta v_k \,\mathrm{d}\tau,$$

ψv_k étant uniquement fonction de r_{12}

$$\Delta v_k = 2v''_k + \frac{4}{r_{12}}v'_k.$$

b. La triple intégration est effectuée d'abord sur les variables $t = r_1 - r_2$, $s = r_1 + r_2$ et enfin sur r_{12}. On réserve ainsi pour la fin la fonction compliquée v_k ou ses dérivées. Par exemple

$$N = \int \varphi^2 \,\mathrm{d}\tau = \pi^2 \int_0^\infty v_k r_{12}\,\mathrm{d}r_{12} \int_{-r_{12}}^{\infty} \mathrm{d}s \int_{-r_{12}}^{+r_{12}} (s^2 - t^2)\psi^2 \,\mathrm{d}t.$$

On se débarrasse des dérivées v''_k et v'_k par des intégrations par parties. Le résultat final est

$$E'(k) = -\frac{5}{8}Z^2 + k^2 + Z^2\frac{A + \varepsilon B}{C + \varepsilon D},$$

$$C = \int_0^\infty \{[36(Zr_{12})^3 - 288(Zr_{12})^2 + 960 Zr_{12} - 1312]\,\mathrm{e}^{-Zr_{12}} + (360 Zr_{12} + 1312)\,\mathrm{e}^{-2Zr_{12}}\}\, v_k r_{12}\,\mathrm{d}r_{12},$$

$$D = \int_0^\infty \left[\frac{9}{10}(Zr_{12})^5 - 6(Zr_{12})^4 + 2(Zr_{12})^3 + 12(Zr_{12})^2 + 8Zr_{12}\right] \times \mathrm{e}^{-\frac{3Zr_{12}}{2}}\, v_k r_{12}\,\mathrm{d}r_{12}$$

$$A = \int_0^\infty \{[18(Zr_{12})^3 - 252(Zr_{12})^2 + 1164 Zr_{12} - 1904]\,\mathrm{e}^{-Zr_{12}} + (720 Zr_{12} + 1904)\,\mathrm{e}^{-2Zr_{12}}\}\, v_k r_{12}\,\mathrm{d}r_{12},$$

$$B = \int_0^\infty \left[\frac{81}{80}(Zr_{12})^5 - \frac{27}{2}(Zr_{12})^4 + \frac{189}{4}(Zr_{12})^3 - \frac{63}{2}(Zr_{12})^2 - 21 Zr_{12}\right] \times \mathrm{e}^{-\frac{3Zr_{12}}{2}}\, v_k r_{12}\,\mathrm{d}r_{12}.$$

L'essai d'une valeur de k demande environ une journée de travail à la machine à calculer de bureau. Quatre valeurs ont été sélectionnées : $k^2 = -0{,}0625$; 0; $0{,}1$; $0{,}2$. Les quatre valeurs obtenues pour E' ont servi à déterminer une cubique d'interpolation dont on a calculé le minimum. Les résultats sont, en unités atomiques,

État 2^1S :

$E'_+ = -2{,}142$ pour $k^2_m = 0{,}145$ contre $-2{,}146$ exp.

État 2^3S :

$E'_- = -2{,}149_5$ pour $k^2_m = 0{,}183$ contre $-2{,}175$ exp.

Contrairement à la règle habituelle l'approximation n'est pas mauvaise pour 2^1S. L'orthogonalité à la fonction d'onde de l'état fondamental est sans doute presque réalisée.

L'écart entre la valeur calculée et la valeur expérimentale est sensiblement le même dans l'état 2^3S et dans l'état fondamental d'après la publication [1]. Le procédé donne une valeur très précise de la distance $1^1S - 2^3S$.

Il est probable que l'intervention du deuxième paramètre déjà utilisé dans le cas de l'état fondamental fera descendre l'énergie calculée de 2^1S un peu audessous de la valeur expérimentale et améliorera sensiblement la valeur trouvée pour 2^3S ainsi que l'écart entre 2^3S et 2^1S.

Manuscrit reçu le 6 novembre 1953.

[1] Pluvinage P. — *Ann. Physique*, 1950, **5**, 145.
[2] Pluvinage P. — *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 789.

UN DISPOSITIF EFFICACE D'AMORÇAGE SANS ÉLECTRODE AUXILIAIRE D'UN TUBE A ÉCLAIRS POUR L'ILLUMINATION D'UNE CHAMBRE DE WILSON

Par A. Rogozinski,

Laboratoire de Physique cosmique
de l'Institut d'Astrophysique, Paris.

L'illumination d'une chambre de Wilson ou d'une chambre à diffusion est obtenue habituellement, en déchargeant brusquement une batterie de condensateurs dans un tube rempli d'un gaz rare. L'amorçage de la décharge est provoqué, dans la plupart des cas, par une impulsion d'une dizaine de kilovolts, obtenue, par exemple, à l'aide d'une bobine d'allumage d'un moteur à explosion et appliquée au tube par l'intermédiaire d'une électrode auxiliaire extérieure.

Le pourcentage d'inefficacités d'un tel dispositif d'allumage n'est pas toujours négligeable. D'autre part, l'emploi d'une électrode auxiliaire, qui doit être portée à une tension relativement élevée, peut s'avérer impossible dans certaines conditions expérimentales.

Pour pallier ces inconvénients, nous avons mis au point un dispositif simple, qui permet de provoquer, sans défaillance, la décharge brusque d'un tube sans avoir recours à une électrode auxiliaire, extérieure ou intérieure; de plus, la tension de la source qui alimente le tube peut alors être très inférieure à la tension d'amorçage de celui-ci.

La partie essentielle du dispositif est constituée par une valve à mercure, caractérisée par une tension inverse d'anode d'une dizaine de kilovolts et par une bobine d'allumage, du genre Delco, d'un moteur à explosion.

Le schéma complet du dispositif est représenté par la figure, où les valeurs des tensions, des résistances et des capacités varient suivant l'énergie $W = \frac{1}{2} CE^2$ à dépenser dans l'éclair et suivant la fréquence de ces éclairs. Les résistances R et R_1 servent uniquement à charger plus ou moins rapidement C et C_1. Par exemple, pour $W = 200$ J, $E = 2\,000$ V et une fréquence moyenne des éclairs de l'ordre de un par minute, on aura

$$C = 100\ \mu\text{F}, \quad R \simeq 10^5\ \omega, \quad C_1 \simeq 1\ \mu\text{F},$$
$$R_1 \simeq 10^5\ \omega \quad \text{et} \quad E_1 \simeq 100\text{-}300\ \text{V}.$$

On excite la bobine, en déchargeant dans son circuit primaire le condensateur C_1 à l'aide d'un commutateur (mécanique ou électronique) I, commandé par la détente de la chambre de Wilson, ou par toute opération pouvant se traduire par la fermeture de I.

La valve à mercure est du type 866-A/866 ou VM-550-A, mais plusieurs autres types conviennent également. Son rôle est double : elle court-circuite l'impulsion positive de la bobine, mais oblige l'impulsion négative à passer par le tube à gaz et à l'amorcer; elle se laisse ensuite traverser par la décharge du condensateur C avec une perte de tension négligeable.

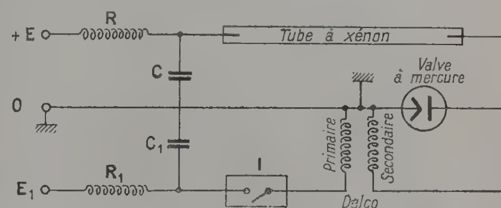


Fig.. — Schéma du dispositif d'amorçage d'un tube à éclairs.

Le tube à xénon utilisé dans nos essais ne s'amorçait que pour des tensions continues supérieures à 5 000 V, mais grâce à l'action du dispositif il était possible de provoquer l'éclair déjà sous une tension de 600 V seulement.

La méthode décrite se prête naturellement à de nombreuses applications, en dehors de celle pour laquelle elle a été mise au point.

Manuscrit reçu le 14 novembre 1953.

SUR L'AMÉLIORATION DE LA TECHNIQUE DES ÉMULSIONS NUCLÉAIRES

Par G. Marguin et M. Maitrot,

Institut de Physique Atomique de Lyon.

De multiples applications des émulsions nucléaires sensibles aux électrons nécessitent la disparition des traces de fond présentes en grand nombre dès leur réception au laboratoire. La seule méthode connue, applicable aux émulsions Ilford G 5 est celle mise au point par G. Albouy et H. Faraggi [1] et [2]. Les émulsions sont placées dans une atmosphère saturée de vapeur d'eau pendant 15 à 20 h à 60° C. Le résultat de ce traitement doit être une disparition

de l'image latente des traces électroniques sans diminution de la sensibilité initiale. En appliquant ce processus à des émulsions Ilford G 5 de 100 μ, nous avons bien obtenu l'effacement des traces de fond, mais la sensibilité de l'ensemble de la plaque ne permettait plus l'enregistrement de nouvelles traces d'électrons. Nous avons repris l'étude de cette méthode en faisant varier les différents facteurs pouvant modifier le résultat.

Dans une première série d'essais, nous avons placé les plaques à l'intérieur d'une étuve à thermostat à fermeture non hermétique, contenant un bac à eau. A 60° C, pendant une vingtaine d'heures, nous avons obtenu un effacement complet de toutes les traces, sauf les traces α, mais un enregistrement du spectre β du radium E ne donne que des fins de traces de quelques grains espacés près de la surface.

Ce traitement, prolongé à la même température jusqu'à 48 h et à 70° C jusqu'à 24 h n'améliore pas la sensibilité. Dans ces conditions, les émulsions gonflent peu, il se produit une faible condensation sur la porte non chauffante de l'étuve.

Dans une deuxième série d'essais, pour obtenir une vapeur d'eau vraiment saturante, nous avons introduit les plaques sur un plateau de verre dans une enceinte contenant l'eau et fermant hermétiquement, l'ensemble étant placé à l'intérieur de l'étuve dans une position telle que toute condensation était supprimée. Dans ces conditions, le gonflement des plaques était bien plus important, par suite d'une plus grande absorption de vapeur d'eau. A 60° C, l'interruption du traitement, après 6 h, permet de constater un effacement progressif des traces, fonction de la pénétration de la vapeur d'eau dans l'émulsion. Simultanément s'est formé un voile de surface uniforme de forte densité. Près des coins de la plaque, ce voile disparaît pour faire place à une zone de grande sensibilité. Après 24 h de traitement, l'effacement est complet, et dans une zone de 3 mm de large sur le pourtour de la plaque, les traces d'électrons enregistrées sont très faciles à suivre, avec des grains plus gros que sur une plaque non effacée, développée dans les mêmes conditions. Pour les traces au minimum d'ionisation, la densité de grains est nettement améliorée et atteint 50 grains pour 100 μ. La sensibilité de cette région est donc *meilleure* que celle d'une plaque *non traitée*. Par contre, dans toute la zone centrale de la plaque le voile a diminué de densité, mais la sensibilité aux électrons est presque nulle. Nous avons essayé d'élargir la zone sensible en prolongeant le traitement. Après deux jours, le voile de surface a entièrement disparu, sans modifier la zone de sensibilité, mais d'énormes amas de grains apparaissent sur les bords près du support de verre où la sensibilité a sensiblement diminué. Enfin, après trois jours, le voile de fond a gagné toute la surface de la plaque, et la sensibilité aux électrons est nulle, même près des bords.

Des essais de séchage accéléré à 5° C avec ventilateur en présence d'un desséchant, n'ont pas modifié les résultats. A 70° C, le traitement est notablement plus rapide, mais les résultats sont semblables. Actuellement cette méthode donne donc une excellente sensibilité pour l'enregistrement, sans fond parasite, des traces voisines du minimum d'ionisation dans une zone limitée à quelques millimètres sur le pourtour des plaques G 5.

A un autre point de vue, les mesures dans les émulsions nucléaires nécessitent une correction importante pour tenir compte de la diminution d'épaisseur au cours du traitement. Pour augmenter la précision des mesures, il est préférable de supprimer l'erreur due à la contraction par la méthode de G. Mignone [3], qui redonne à l'émulsion son épaisseur initiale par un bain dans une solution de glycérine avant le séchage. L'application de ce procédé à des émulsions G 5 de 100 μ nécessite des conditions très différentes. Nous avons étudié la variation du facteur de contraction K en fonction de la concentration de glycérine.

Pour une concentration déterminée, K diminue avec le temps d'immersion jusqu'à une valeur constante obtenue après 15 h à 20° C; l'épaisseur de l'émulsion a été mesurée au microscope à 1 μ près.

Les résultats obtenus sont les suivants : sans traitement à la glycérine le coefficient de contraction K est de 2,5; une solution de glycérine à 10 pour 100 abaisse K à 1,5 et ce n'est que pour une concentration de 20 pour 100 que nous obtenons $K = 1$. Nous avons vérifié que la suppression de la contraction est sans influence sur la distorsion, qui dépend essentiellement du traitement précédent.

Manuscrit reçu le 28 novembre 1953.

[1] ALBOUY G. — *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **230**, 1351.
[2] ALBOUY G. et FARAGGI H. — *Rev. Sc. Instr.*, 1951, **22**, 532.
[3] MIGNONE G. — *Nuovo Cimento*, 1951, **8**, 897.

SUR L'EXISTENCE DE BANDES D'ABSORPTION DANS LE SPECTRE HERTZIEN, POUR LES SEMI-CONDUCTEURS MONOATOMIQUES (BORE, SÉLÉNIUM)

PAR J. MEINNEL.
Faculté des Sciences de Rennes.

Au cours de l'étude hertzienne de nombreux solides minéraux, divers chercheurs ont mis en évidence *des bandes d'absorption* [1], [2], [3], [4], [5], [6] *dues à des défauts de réseau* (d'origine physique ou chimique); les solides étudiés étaient soit des *cristaux ioniques* (purs ou impurs), soit des *oxydes semi-conducteurs* (contenant un excès stœchiométrique d'un des constituants).

Il était important [7], [8], [9] de rechercher si de tels phénomènes existaient aussi, dans le cas des *semi-conducteurs monoatomiques* (Ge, Si, B, Se impurs, etc.). Mais dans ce cas plus encore que dans les précédents, la conductibilité par porteurs libres vient se superposer aux phénomènes d'absorption hertzienne dus aux porteurs liés — et souvent les masque.

Comme nous l'indiquerons prochainement [11] *l'utilisation du diagramme* $\log\varepsilon''/\log\nu$ *nous a permis de séparer les deux types de pertes.*

N'ayant pu disposer de silicium et de germanium de pureté suffisante, nous avons commencé par l'étude d'échantillons de bore et de sélénium d'origines diverses (trois types de bore amorphe et des échantillons de sélénium du commerce sous la forme noire métallique).

Les produits pulvérisés étaient placés dans un condensateur cylindrique, lui-même enfermé dans une enceinte où l'on pouvait faire le vide. Les mesures ont été effectuées entre 88 et 300° K, de 100 Hz à 400 kHz.

Dans le cas du bore, on pourra comparer nos résultats à ceux obtenus par Lagrenaudie [10], grâce à une autre technique (conductibilité).

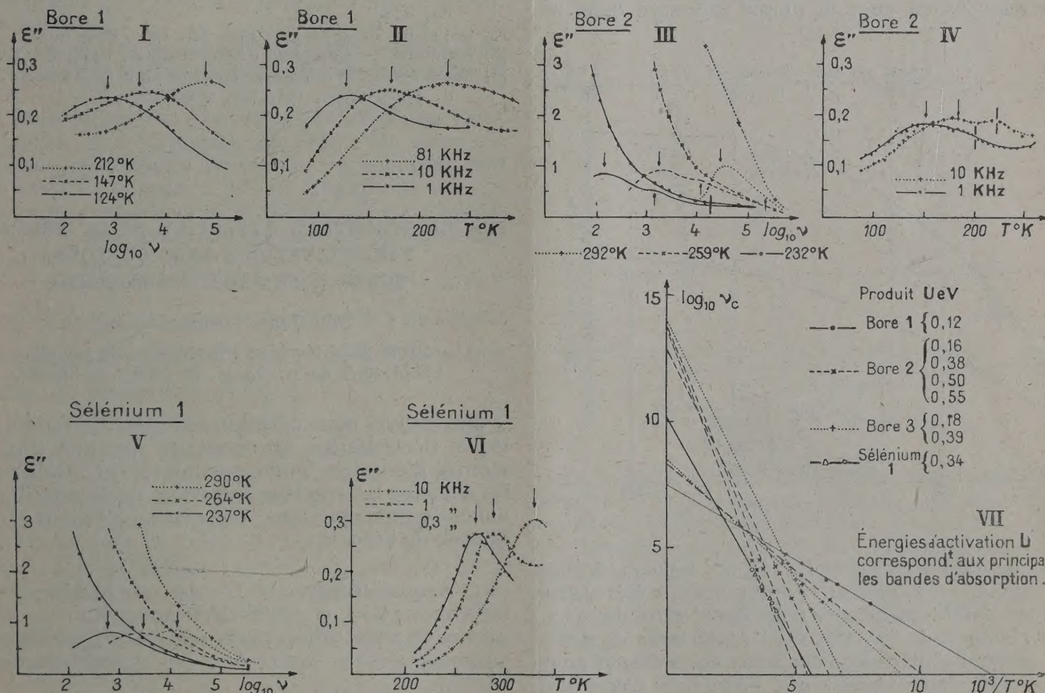
Nos résultats sont résumés dans les figures I à VII.

Dans tous les cas, nous avons observé une bande d'absorption hertzienne (et parfois plusieurs).

En admettant que les phénomènes de relaxation diélectrique observés soient des processus régis par une loi de la forme $\nu_c = A \exp\left(-\frac{U}{kT}\right)$, nous avons pu calculer les énergies d'activation correspondantes qui varient de 0,12 à 0,60 eV : les valeurs exactes obtenues sont indiquées sur la figure VII.

Pour le bore on peut noter (*fig.* I et II) que les bandes à faible énergie d'activation (inférieure à 0,20 eV) sont peu affectées par l'état de surface, alors que la présence de traces d'humidité semble accroître l'intensité des bandes à énergie d'activation plus élevée, ainsi que la conductibilité (*fig.* III et V).

Nous poursuivons ces recherches pour préciser



le rôle des divers facteurs intervenant dans *l'absorption hertzienne mise ainsi en évidence pour des semi-conducteurs monoatomiques*; cette absorption ne semble pas avoir été signalée jusqu'ici malgré l'existence de très nombreux travaux sur les propriétés électriques de ces corps (notamment Se).

Manuscrit reçu le 4 décembre 1953.

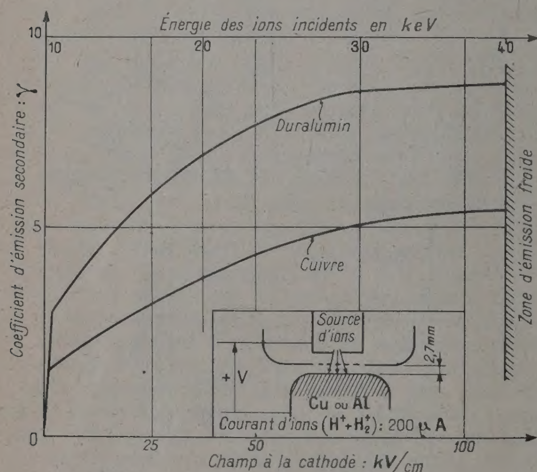
[1] Breckenridge R. G. — *J. Chem. Phys.*, 1948, **16**, 1959; 1950, **18**, 913; Imperfections in nearly perfect cristals, Wiley, New-York, 1952, 219.
[2] Kondo S. et Suita T. — *J. Phys. Soc. Japan*, 1950, **5**, 375.
[3] Okada T. — *Busseiron Kenkyu*, 1949, **20**, 171.
[4] Haven Y. — *J. Chem. Phys.*, 1953, **21**, 171.
[5] Freymann Mme M. et Freymann R. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **235**, 1125; 1953, **236**, 1256; *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 589; 1953, **14**, 203-211; *J. Chem. Phys.*, 1952, **20**, 1970.
[6] Meinnel J. et Daniel E. — *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 425.
[7] Freymann Mme M. et Freymann R. — A paraître *J. Physique Rad.*
[8] Castellan G. W. et Seitz F. — Semi conducting materials (19), Butterworths, 1951.
[9] Benedict T. S. et Shockley W. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 1152.
[10] Lagrenaudie J. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 554, 1953, **14**, 14.
[11] Meinnel J. — A paraître.

NOTE SUR L'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE SECONDAIRE DES MÉTAUX PAR BOMBARDEMENT D'IONS

Par J. Sommeria, Ingénieur E. S .E.
Laboratoire de Synthèse atomique, Ivry (Seine).

Nous avions constaté souvent au cours d'essais sur les tubes accélérateurs ou les sources d'ions que les parties en aluminium ou en duralumin, bombardées par les ions, donnaient des émissions électroniques secondaires beaucoup plus importantes que celles observées avec les métaux plus lourds, comme le cuivre, le chrome ou le fer.

Ceci était en contradiction avec ce que l'on admet couramment par analogie avec l'émission due au bombardement d'électrons, c'est-à-dire une émission plus intense pour les métaux lourds. Celle-ci croît régulièrement avec le numéro atomique [1], [2]. Nous relevons en effet la phrase suivante dans un



article de Chick et Miranda [4] sur les essais d'un tube accélérateur d'ions : « l'aluminium a été utilisé pour son faible coefficient d'électrons secondaires ».

Les résultats de mesures et d'expériences de différents auteurs sont cependant assez concordants pour affirmer que dans certains cas, l'émission secondaire due aux ions varie en sens inverse de celle due aux électrons en fonction du numéro atomique (plus grande pour les métaux légers) [3], [5]. Le magnésium a, par exemple, été employé comme cathode froide de préférence aux autres métaux pour obtenir des décharges autonomes stables, sous basse pression, notamment dans une source d'ions [6].

Il est possible que certaine mesures aient été faussées par une couche superficielle d'impuretés ou d'oxyde. Les ions sont, en effet, moins pénétrants que les électrons et leurs effets secondaires prennent naissance dans des couches plus minces contenant une plus grande proportion d'impuretés.

La figure ci-dessus indique le montage et les mesures que nous avons effectués pour le cuivre et le duralumin, avec des ions d'hydrogène. Nous pensons que l'utilisation d'un faisceau d'hydrogène relativement intense (200 μA) provoque la réduction de la couche d'oxyde du duralumin ainsi qu'un dégazage efficace de la surface. Nous nous sommes placé dans des conditions analogues à celles des électrodes d'un tube accélérateur, en réalisant un champ électrique intense à la surface de la cathode. Un champ extracteur intense favorise, en effet, l'émission secondaire [7]. On constate une différence importante d'émission entre le cuivre et le duralumin (dans le rapport de 5 à 8).

Manuscrit reçu le 8 décembre 1953.

[1] Trump J. G. et Van de Graaff R. J. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 44-45.
[2] Massey H. S. W. et Burhop E. H. S. — Electronic and Ionic impact phenomena. Clarendon Press, Oxford, p. 306-307.
[3] *Ibid.*, p. 549.
[4] Chick D. R. et Miranda F. — *J. Sc. Instr.*, 1950, **27**, 337-338.
[5] Couchet G. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **235**, 944.
[6] Lorrain. — *Canadian J. Research*, A. 1947, **25**, 338.
[7] Webster E. W., Van de Graaff R. J. et Trump J. G. — *J. Appl. Phys.*, 1952, **23**, 264-266.

SUR LA STRUCTURE HYPERFINE DE LA RÉSONANCE PARAMAGNÉTIQUE DANS QUELQUES SUBSTANCES PHOSPHORESCENTES

Par Jean Uebersfeld,
École Supérieure de Physique et de Chimie,
Laboratoire de M. Lucas, Directeur de l'École.

J'ai essayé, pour détecter la résonance paramagnétique électronique, un montage simplifié qui s'est montré d'une très bonne sensibilité, car il m'a permis de détecter la structure hyperfine de la raie de résonance paramagnétique dans des solutions solides diluées de l'ion Mn^{++}.

1. **Appareillage**. — L'étude se ramène à celle de l'absorption d'ondes électromagnétiques de fréquence et polarisation convenables par des substances paramagnétiques soumises à un champ magnétique continu.

La fréquence des ondes est voisine de 9 000 MHz. La technique utilisée est donc celle des hyperfréquences (U. H. F.). Les substances paramagnétiques sont placées suivant l'axe d'une cavité cylindrique résonnant suivant le mode TE_{011} [1] et soumises à un champ magnétique continu de l'ordre de 3 500 Oe. L'oscillateur produisant des ondes U. H. F., découplé par un atténuateur, est placé dans l'un des bras d'un T magique. Le détecteur (simple cristal) est placé dans le bras conjugué.

Un des bras symétriques comprend la cavité résonnante et un correcteur, l'autre bras une charge adaptée.

En l'absence du phénomène d'absorption paramagnétique et la cavité étant à la résonance, on équilibre le pont à l'aide du correcteur.

Lorsque l'absorption paramagnétique se produit,

le pont est déséquilibré et l'on détecte une certaine puissance.

Pratiquement le champ magnétique continu est modulé à 50 p/s à l'aide de deux enroulements supplémentaires, ce qui a pour effet de moduler à 50 Hz le phénomène d'absorption paramagnétique.

Après amplification à l'aide d'un amplificateur pour basses fréquences, on peut faire apparaître sur l'écran d'un oscillographe cathodique la courbe donnant la puissance U. H. F. absorbée en fonction du champ magnétique continu.

2. **Résultats.** — Le choix du mode TE_{011} pour la cavité résonnante permet d'avoir un coefficient de surtension supérieur à 5 000 (sans précaution spéciale d'argenture et de finition des surfaces) et, par suite, une grande sensibilité qui permet de voir avec un simple cristal détecteur les phénomènes qui n'avaient été vus jusqu'ici en général, que grâce à une détection superhétérodyne.

Ce mode permet de plus en désaxant l'échantillon, de comparer les pertes diélectriques des échantillons étudiés.

J'ai ainsi pu mettre en évidence la résonance paramagnétique et la structure hyperfine [2] dans des substances phosphorescentes au manganèse (qui sont en fait de grandes dilutions d'oxyde de manganèse paramagnétique dans le sulfure de zinc) préparées suivant une technique spéciale [3] et obligeamment prêtées par M. Grillot.

Les concentrations sont de 5.10^{-3}, 10^{-3}, 5.10^{-4} et 5.10^{-5} g de Mn par gramme de dilution. (La courbe de résonance présente six pics, on retrouve le spin nucléaire du manganèse $S = \frac{5}{2}$.)

La structure hyperfine devient de plus en plus nette à mesure que la dilution augmente.

Le signal est encore très nettement visible sur l'oscilloscope pour une concentration de Mn^{++} inférieure à 5.10^{-5} g de Mn par gramme de dilution.

Des études sont en cours afin de préciser la relation existant entre la largeur exprimée en oersteds de la structure hyperfine et la concentration de l'ion, relation qui doit permettre de donner un dosage facile et rapide des petites quantités de Mn dans toute une série de dilutions.

Manuscrit reçu le 15 décembre 1953.

[1] UEBERSFELD J. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **236**, 1645.
[2] UEBERSFELD et COMBRISSON. — *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 104.
[3] GRILLOT. — *Bull. Soc. Chim.*, 1951, **18**, 39.

ÉTUDE DU RAPPORT $\frac{\text{Capture électronique}}{\beta^+}$ DE ^{44}Sc

Par Mmes H. LANGEVIN et N. MARTY,
Laboratoire de Chimie nucléaire.

L'étude du mode de désintégration de ^{44m}Sc (58,6 h) et ^{44}Sc (3,92 h) [1], [2], [3], [4], [5] a conduit à adopter le schéma représenté figure 1*a*. Cependant, en ce qui concerne le rapport $\frac{\text{capture électronique}}{\beta^+} = \frac{Pe}{P+}$ il subsistait un désaccord entre la valeur théorique de $\frac{1}{25}$ et les résultats expérimentaux [6]; en effet, les valeurs du rapport des intensités $\frac{\gamma_{1,16\,\text{Mev}}}{\gamma_{0,511\,\text{Mev}}}$ déterminées par absorption dans le plomb par Hibdon et coll. [3] et au spectrographe magnétique par effet photoélectrique dans le plomb par Bruner et Langer [5] conduisaient respectivement à $\frac{Pe}{P_+} = 2$ et 1.

Il nous a semblé utile de reprendre la mesure de ce rapport avec un spectromètre à scintillations [7], [8].

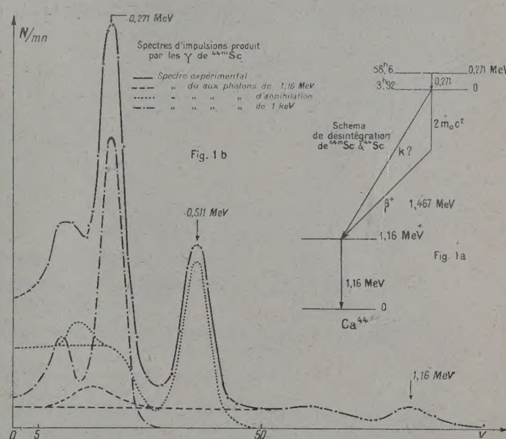


Fig. 1.

^{44m}Sc était obtenu par réaction (α, n) sur ^{41}K en irradiant BO_3K avec les α de 52 MeV du synchrocyclotron Philips d'Amsterdam. La source, séparée par chromatographie a été très aimablement préparée par M. Lederer [(1)] que nous tenons à remercier. Son intensité au début des mesures était de l'ordre de 0,1 μC.

La source de ^{44m}Sc était déposée entre deux rondelles d'argent absorbant totalement les électrons positifs de 1,467 MeV qu'elle émet; elle était placée à environ 2 mm de la face avant d'un cristal cylindrique de INa—Tl de 23 mm de diamètre et 28 mm d'épaisseur. La figure 1*b* représente le spectre des impulsions : on identifie facilement les raies de 1,16, 0,511 et 0,271 MeV par comparaison respectivement avec les raies de 1,12 MeV de ^{46}Sc, 0,511 d'annihilation de ^{44}Cu et 0,279 de ^{203}Hg.

Principe de la méthode de mesure du rapport $\frac{Pe}{P_+}$. — Les β^+ étant complètement annihilés à une distance très faible de la source on a :

$$\frac{N_{\gamma\,0,511}}{N_{\gamma\,1,16}} = \frac{2}{1 + \left(\frac{Pe}{P_+}\right)_{Sc}}.$$

(1) Institut du Radium, laboratoire Curie.

Ce rapport a été déterminé par comparaison avec le rapport des intensités des photons de 0,511 et 1,28 MeV de ^{22}Na, en utilisant une source géométriquement identique à celle de ^{44m}Sc et placée dans la même position. Le schéma de désintégration de ^{22}Na est représenté figure 2*a*; la valeur de $\left(\frac{\mathrm{Pe}}{\mathrm{P}_+}\right)_{^{22}\mathrm{Na}}$ est donnée théoriquement comme égale à 0,1 pour une transition permise et expérimentalement comme égale ou inférieure [9] à cette valeur.

a. Méthode des surfaces. — Si l'on extrait des spectres totaux d'impulsions de ^{44m}Sc (*fig.* 1*b*) et de ^{22}Na (*fig.* 2*b*), les spectres de surface $S_{h\nu}$ attribuables respectivement aux photons d'énergie $h\nu = 1{,}16$ et 0,511 MeV, $h\nu = 1{,}28$ et 0,511 MeV, on obtient, en tenant compte des rendements totaux $\rho_{1,16}$ et

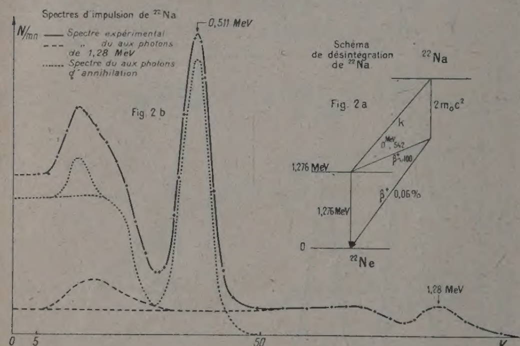


Fig. 2.

$\rho_{1,28}$ du cristal dans la géométrie utilisée pour des photons de 1,16 et 1,28 MeV :

$$\frac{1+\left(\frac{\mathrm{Pe}}{\mathrm{P}_+}\right)_{\mathrm{Sc}}}{1+\left(\frac{\mathrm{Pe}}{\mathrm{P}+}\right)_{\mathrm{Na}}} = \left(\frac{S_{0,511}}{S_{1,28}}\right)_{\mathrm{Na}} \left(\frac{S_{1,16}}{S_{0,511}}\right)_{\mathrm{Sc}} \frac{\rho_{1,28}}{\rho_{1,16}}.$$

Le fond Compton des photons de 1,16 MeV a été extrapolé par comparaison avec celui des photons de 1,12 MeV de ^{65}Zn; le fond Compton des photons de 1,28 MeV est déduit de même sous la raie de 0,511 MeV. On a utilisé, d'autre part, le spectre d'annihilation de ^{64}Cu.

On obtient par le calcul

$$\frac{\rho_{1,28}}{\rho_{1,16}} = 0{,}95.$$

On en déduit

$$1+\left(\frac{\mathrm{Pe}}{\mathrm{P}_+}\right)_{\mathrm{Sc}} = 1{,}05 \mp 0{,}15.$$

b. Méthode des pics photoélectriques. — Dans une étude préalable par coïncidences β—γ, on a déterminé la variation avec l'énergie de la hauteur ε du pic photoélectrique par γ émis, pour une position du maximum de la raie et une largeur de bande du sélecteur données. On a utilisé en particulier les photons de 1,28 MeV de ^{22}Na et 1,12 MeV de ^{46}Sc, ce qui permet d'obtenir par interpolation :

$$\varepsilon_{1,16\,\mathrm{MeV}} = (1{,}2 \mp 0{,}07)\,\varepsilon_{1,28\,\mathrm{MeV}}.$$

Après déduction des fonds compton des γ énergiques sous les raies d'annihilation, nous avons mesuré les hauteurs H des pics photoélectriques de 1,28 et 0,511 MeV pour ^{22}Na et 1,16 et 0,511 MeV pour ^{44}Sc ramenées à une position du maximum de la raie donnée.

On obtient :

$$\frac{H_{1,28}}{H_{0,511}} = \left[1+\left(\frac{\mathrm{Pe}}{\mathrm{P}+}\right)_{\mathrm{Na}}\right]\frac{\varepsilon_{1,28}}{2\,\varepsilon_{0,511}},$$

$$\frac{H_{1,16}}{H_{0,511}} = \left[1+\left(\frac{\mathrm{Pe}}{\mathrm{P}+}\right)_{\mathrm{Sc}}\right]\frac{\varepsilon_{1,16}}{2\,\varepsilon_{0,511}}.$$

Soit :

$$1+\left(\frac{\mathrm{Pe}}{\mathrm{P}+}\right)_{\mathrm{Sc}} = 1 \mp 0{,}1.$$

Conclusion. — Les deux méthodes conduisent à une valeur de $\left(\frac{\mathrm{Pe}}{\mathrm{P}+}\right)_{\mathrm{Sc}}$ en bon accord avec la valeur théorique. La méthode ne permet pas d'atteindre une meilleure précision pour un rapport $\frac{\mathrm{Pe}}{\mathrm{P}+}$ inférieur à 0,1.

Manuscrit reçu le 17 décembre 1953.

[1] WALKE H. — *Phys. Rev.*, 1940, **57**, 163.
[2] SMITH G. P. — *Phys. Rev.*, 1942, **61**, 578.
[3] HIBDON C. T. POOL M. L. et KURBATOV J. D. — *Phys. Rev.*, 1945, **67**, 289.
[4] CUFFEY W. H. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 180.
[5] BRUNER J. A. et LANGER L. M. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 606.
[6] GOLDHABER M. et HILL R. D. — *Rev. Mod. Physics*, 1952, **24**, 179.
[7] LANGEVIN M., ALLARD G. et CORBE G. — *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 691.
[8] MARTY N., LANGEVIN H. et HUBERT P. — *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 663.
[9] MILLER R. H. et SHERR R. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1953, **28**, 12.

Le Gérant : MAURICE BLONDIN. 145092 IMP. GAUTHIER-VILLARS, 55, quai des Grands-Augustins, Paris. — 1954.